

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE NANCY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

André L. RAHARINAIVO

PREMIERE THESE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS CREES PAR IRRADIATION
A L'AIDE DE PARTICULES ALPHA DANS L'URANIUM A 4,2°K

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 28 juin 1968 devant la Commission d'Examen

MM. G. CHAMPIER

Président

M. FELDEN

B. DEVIOT

Y. QUERE

Examineurs

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE NANCY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

André L. RAHARINAIVO

PREMIERE THESE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS CREES PAR IRRADIATION
A L'AIDE DE PARTICULES ALPHA DANS L'URANIUM A 4,2°K

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 28 juin 1968 devant la Commission d'Examen

MM. G. CHAMPIER

Président

M. FELDEN

B. DEVIOT

Y. QUERE

Examineurs



ANNEE SCOLAIRE 1967 - 1968

Doyen : M. AUBRY

Assesseur : M. GAY

Doyens honoraires : MM. CORNUBERT - DELSARTE - ROUBAULT

Professeurs honoraires : MM. RAYNAUD - LAFITTE - LERAY - JULY -
 LAPORTE - EICHORN - GODEMENT - DUBREUIL-L. SCHWARTZ -
 DIEUDONNE - DE MALLEMANN - LONGCHAMBON - LETORT - DODE -
 GAUTHIER - GOUDET - OLMER - CORNUBERT - CHAPELLE - GUERIN -
 WAHL

Maîtres de conférence honoraires : MM. LIENHART - PIERRET

Professeurs :

MM.	DELSARTE	Analyse supérieure	MM.	GAYET	Physiologie
	ROUBAULT	Géologie		HADNI	Physique
	CAPELLE	Mécanique rationnelle	*	BASTICK	Chimie
	VEILLET	Biologie animale		DUCHAUFOR	Pédologie
	BARRIOL	Chimie théorique		GARNIER	Agronomie
	BIZETTE	Physique		NEEL	Chimie organique industrielle
	GULLIEN	Electronique		BERNARD	Géologie appliquée
	LEGRAS	Mécanique rationnelle	*	CHAMPIER	Physique
	BOLFA	Minéralogie	*	GAY	Chimie biologique
	NICLAUSE	Chimie		STEPHAN	Zoologie
	FAIVRE	Physique appliquée	*	CONDE	Zoologie
	AUBRY	Chimie minérale	*	WERNER	Botanique
	COPPENS	Radiogéologie		EYMAR	Calcul différentiel et intégral
	DUVAL	Chimie		LEVISALLES	Chimie organique
	FRUHLING	Physique	Mme	HERVE	Méthodes méth. de la physique
	HILLY	Géologie	MM.	FELDEN	Physique
	LE GOFF	Génie chimique	*	GOSSE	Mécanique physique
	SUHNER	Physique expérimentale	*	DAVOINE	Physique (ENSMIM)
	CHAPON	Chimie biologique		HORN	Physique 1er cycle
	HEROLD	Chimie minérale industrielle	Mme	LUMER	Mathématiques
	SCHWARTZ B.	Exploitation minière		N ...	Chimie biologique
*	MALAPRADE	Chimie		N ...	Mécanique appliquée
	MANGENOT	Botanique		N ...	Chimie physique

(* Professeur titulaire à titre personnel).

Maîtres de conférences :

Mme	BASTICK	Chimie P.C. Epinal	MM.	PROTAS	Minéralogie
MM.	GUDEFIN	Physique		JOZEFOWICZ	Physico-chimie
	ROCCI	Géologie		JURAIN	Géologie C.B.G.
	VUILLAUME	Psychophysiologie		RIVAIL	Chimie appliquée (C.U.C.E.S.)
	FRENTZ	Biologie animale		VILLERMAUX	Génie chimique
	MARI	Chimie (I.S.I.N.)		METCHE	Biochimie appliquée (Brasserie)
	AUROUZE	Géologie		PAIR	Mathématiques appliquées
	DEVIOT	Physique du solide		BAUMANN	Physique 1er cycle
	FLECHON	Physique P.C.		DURAND	Physique
Mlle	HUET	Mathématiques C.B.G.		GRANGE	Physique (I.S.I.N.)
	VIGNES	Métallurgie		N ...	Mécanique des fluides (I.S.I.N.)
	BALESDENT	Thermodynamique chimique appliquée (E.N.S.I.C.)		N ...	Mécanique (I.S.I.N.)
				N ...	Probabilités et statistiques
	BLAZY	Minéralogie appliquée (E.N.S.G.)		N ...	Mathématiques
	JANOT	Physique P.C. Epinal		N ...	Mathématiques P.C.
	JACQUIN	Pédologie et chimie agricoles		N ...	Mathématiques C.B.G.
	MAINARD	Physique M.P.		N ...	Physiologie animale
	CACHAN	Entomologie appliquée (E.N.S.A.)		N ...	Mathématiques M.P.
	MARTIN	Chimie P.C.		N ...	Exploitation minière (E.N.S.M.I.M.)
	PAULMIER	Mécanique expérimentale			



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551919_0012

REMERCIEMENTS

Effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, ce travail a intéressé M. F. SEBILLEAU, Chef des Services des Eléments Combustibles au Plutonium et des Etudes Radio-métallurgiques, et M.P. BUSSY, Chef du Service du Plutonium. Nous les remercions pour leur soutien.

Que M. Y. QUERE, Chef de la Section de Métallurgie du Plutonium, veuille bien accepter notre reconnaissance pour les nombreux conseils, les critiques et les encouragements qu'il nous a prodigués.

Que M. le Professeur B. DEVIOT veuille bien recevoir nos remerciements pour les fréquents jugements portés sur notre étude qu'il a dirigée.

Que M. le Professeur G. CHAMPIER, qui a bien voulu présider le Jury d'Examen, daigne agréer notre gratitude pour l'enseignement qu'il nous a donné.

Que M. le Professeur M. FELDEN soit vivement remercié d'avoir accepté de faire partie du Jury d'Examen.

M. J.C. JOUSSET a suivi cette étude avec intérêt et compétence et jusque dans certains détails. Nous l'en remercions vivement.

Nous remercions également tous nos camarades de travail, en particulier :

M. R.R. CONTE, M. J. DURAL et M. R. BLOT pour leur aide compétente dans les problèmes de cryogénie et l'approvisionnement en hélium liquide,

M. J. LETEURTRE pour les riches discussions que nous avons eues et pour son aide en microscopie électronique,

M. M. ASTY, M. D. LESUEUR, M. J.J. QUILLICO et M. V. VENDITTI pour leur aide matérielle en différents domaines.

TABLE DES MATIERES

	Pages
INTRODUCTION	9
I - PROPRIETES PHYSIQUES DE L'URANIUM A BASSE TEMPERATURE	11
1.1 - Anomalies physiques	11
1.1.1 - Résistivité électrique	11
1.1.2 - Coefficient de Hall	11
1.1.3 - Pouvoir thermoélectrique	11
1.1.4 - Chaleur spécifique	11
1.1.5 - Paramètres cristallins	12
1.1.6 - Constantes élastiques	12
1.1.7 - Interprétation des anomalies	13
1.2 - Expériences de Jousset	14
1.2.1 - Création d'interstitiels par trempe	14
1.2.2 - Expérience de trempe	15
1.2.3 - Interprétation	16
II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL	17
2.1 - Echantillons	17
2.1.1 - Géométrie des échantillons	17
2.1.2 - Montage des échantillons	17
2.1.3 - Porte-échantillons	19
2.1.3.1 - Description	19
2.1.3.2 - Montage des porte-échantillons	19
2.1.4 - Traitement des échantillons d'uranium	20
2.1.4.1 - Echantillon brut de laminage	20
2.1.4.2 - Echantillon recuit en phase α	21
2.2 - Sources radioactives	21
2.2.1 - Description des sources	21

2.2.2 - Propriétés du noyau d'américium-241	21
2.2.3 - Energie des particules α	22
2.2.4 - Flux de particules α	25
2.3 - Cryostat et accessoires	27
2.3.1 - Le cryostat et ses aménagements	27
2.3.2 - Circuit de l'hélium	28
2.3.3 - Pression de l'hélium	29
2.3.4 - Sécurités	30
2.4 - Montages électriques	30
2.4.1 - Appareils et circuits de mesures	30
2.4.2 - Mesure des résistances électriques	32
2.4.3 - Dispositif de recuit des échantillons	34
III - IRRADIATION DE L'URANIUM	35
3.1 - Rappels sur la variation de résistivité sous irradiation	35
3.1.1 - Calcul de la résistivité induite par irradiation	35
3.1.2 - Irradiations de l'uranium	36
3.1.3 - Auto-irradiation aux particules α	37
3.2 - Dispersion des mesures	38
3.3 - Uranium recuit en phase α	38
3.3.1 - Diminution de résistivité aux faibles doses	38
3.3.2 - Augmentation de la résistivité	39
3.4 - Uranium brut de laminage	39
3.4.1 - Etude préalable	39
3.4.1.1 - Etude métallographique	39
3.4.1.2 - Comparaison avec l'uranium α	41
3.4.2 - Variation de la résistivité sous irradiation	43
3.4.2.1 - Echantillons trempés à 4,2°K	43
3.4.2.2 - Influence des défauts de trempe	43
3.4.2.3 - Comparaison entre l'influence des défauts de trempe et celle des défauts d'irradiation	44
3.5 - Uranium préalablement irradié aux neutrons	45
3.5.1 - Irradiation préalable en pile	45
3.5.2 - Irradiation aux particules α	45
3.6 - Comparaison des irradiations aux particules α pour les divers types d'uranium	46
IV - RECUITS DES DEFAUTS D'IRRADIATION	49
4.1 - Rappel de la théorie des recuits	49

4.1.1 - Méthodes de recuits	49
4.1.1.1 - Recuits isothermes	49
4.1.1.2 - Recuits isochrones	49
4.1.1.3 - Recuits combinés	49
4.1.2 - Interprétation des recuits	49
4.1.2.1 - Cinétique de recuit	49
4.1.2.2 - Stades de recuit	51
4.1.2.3 - Energie de migration	51
4.2 - Précisions obtenues sur les mesures de recuit	52
4.2.1 - Température	52
4.2.2 - Résistances électriques	52
4.3 - Recuit de l'uranium α	52
4.4 - Recuits de l'uranium brut de laminage	53
4.4.1 - Echantillon trempé à 4,2°K	53
4.4.1.1 - Echantillons non irradiés	53
4.4.1.2 - Echantillons irradiés	55
4.4.2 - Echantillon sans défaut de trempe	56
4.5 - Recuits de l'uranium préalablement irradié aux neutrons	56
4.6 - Comparaison des différents recuits	58
4.6.1 - Comparaison des stades de recuit	59
4.6.2 - Comparaison des énergies de migration	59
V - INTERPRETATION DES RESULTATS	61
5.1 - Interprétation de la variation de résistivité sous irradiation	61
5.1.1 - Interprétation de la dispersion des mesures	61
5.1.2 - Interprétation de la diminution initiale de résistivité pour l'uranium α	61
5.1.3 - Interprétation des changements de pente après recuits	63
5.2 - Comparaison des défauts d'irradiation et de ceux de trempe	64
5.2.1 - Cinétiques et stades de recuits	64
5.2.2 - Energies de migration	65
5.3 - Comparaison des irradiations aux particules α et de celles aux neutrons et aux électrons	66
5.3.1 - Variation de résistivité sous irradiation	66
5.3.1.1 - Méthode de comparaison	66
5.3.1.2 - Comparaison avec les irradiations aux neutrons	67
5.3.1.3 - Comparaison avec les irradiations aux électrons	69

5.3.2 - Courbes de recuit	69
5.3.2.1 - Comparaison avec les irradiations aux électrons	69
5.3.2.2 - Comparaison avec les irradiations aux neutrons	69
5.4 - Nature des défauts créés par les particules α	70
5.4.1 - Possibilités d'expériences complémentaires	70
5.4.2 - Configuration des défauts créés par les particules α	70
VI - CONCLUSION	73
VII - APPENDICE	75
VIII - REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	77
IX - LISTE DES FIGURES	83

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS CREES PAR IRRADIATION A L'AIDE DE PARTICULES ALPHA DANS L'URANIUM A 4,2°K

INTRODUCTION

De nombreuses propriétés de l'uranium présentent des anomalies vers 45°K et vers 22°K. Différentes hypothèses ont été émises pour les expliquer. Certains auteurs pensent à un changement de phase, d'autres à une transformation magnétique. Ces phénomènes créent des défauts de nature interstitielle dans le réseau cristallin, lorsque l'échantillon est trempé brutalement à 4°K : on ne trempe pas seulement une phase.

Notre travail avait pour but de tester la validité de cette hypothèse par des expériences d'irradiation aux particules α . La mise d'un échantillon d'uranium dans de l'hélium liquide constitue une trempe pouvant créer, si la vitesse de refroidissement n'est pas excessivement faible, des défauts dits de trempe. L'irradiation aux particules α , également dans l'hélium liquide, crée des défauts ponctuels d'irradiation. Un de nos buts est de comparer les propriétés des défauts de trempe et de ceux d'irradiation.

Un autre but de notre travail était de comparer les défauts créés par les particules α à ceux créés par des électrons, d'une part, et des neutrons, par l'intermédiaire des fragments de fission, d'autre part. Les comparaisons des défauts créés par irradiation aux particules α avec ceux créés par trempe et ceux créés par irradiation aux électrons et ceux créés par irradiation aux neutrons sont faites au chapitre V.

Auparavant, nous donnerons un rappel sur les propriétés de l'uranium (chapitre I) et la description de notre dispositif d'irradiation (chapitre II). Il s'agit d'un dispositif n'utilisant aucune installation "lourde" comme les réacteurs nucléaires ou les accélérateurs de particules. Nous avons utilisé des sources radioactives maintenues de part et d'autre de l'échantillon à irradier. Le flux instantané de particules est très faible, ce qui nécessite des durées d'irradiation de l'ordre de quelques mois.

Pour étudier l'endommagement des échantillons, nous suivons la variation de la résistance électrique sous irradiation (chapitre III) puis nous étudions la nature des défauts produits (chapitre IV) à l'aide de recuits.

Nous avons irradié nos échantillons dans l'hélium liquide, à une température (4,2°K) où l'agitation thermique est assez faible pour geler les défauts ponctuels. En effet, dans presque tous les métaux irradiés jusqu'à maintenant les défauts d'irradiation sont gelés, immobilisés dans le réseau cristallin, et ne migrent qu'au delà de 20°K. Notre travail a mis en évidence un fait entrevu par d'autres auteurs, à savoir la mobilité de défauts ponctuels dans l'uranium en deçà de 5°K.

CHAPITRE I

PROPRIETES PHYSIQUES DE L'URANIUM

A BASSE TEMPERATURE

1.1 - Anomalies physiques

Les courbes de variation de plusieurs paramètres physiques, en fonction de la température, présentent pour l'uranium des anomalies principalement à 45°K et 20°K. Nous allons passer en revue ces différentes propriétés qui sont la résistivité électrique, le coefficient de Hall, le pouvoir thermoélectrique, la chaleur spécifique, les paramètres cristallins et les constantes élastiques.

1.1.1 - Résistivité électrique

BERLIN COURT [1] a mesuré la résistivité électrique de monocristaux d'uranium en fonction de la température T. La courbe $\frac{\rho}{T}$ en fonction de T donne un changement de pente à 45°K.

Les expériences ultérieures de MEADEN [2], ARAJS et COLVIN [3] et JOUSSET [4] ont confirmé ce fait, bien que les températures de changement de pente se dispersent entre 40°K et 50°K pour ces différents auteurs.

D'autre part, JOUSSET [4] [5] a observé une forte déviation à la loi de Matthiessen pour les défauts d'irradiation de l'uranium, à basse température surtout entre 10°K et 40°K.

1.1.2 - Coefficient de Hall

La courbe donnant la variation du coefficient de Hall en fonction de la température [1] montre une très grande variation entre 20°K et 40°K.

1.1.3 - Pouvoir thermoélectrique

Les expériences de TYLER, WILSON et VOLGA [6] ont montré que le pouvoir thermoélectrique de l'uranium présente, en fonction de la température, un minimum à 40°K.

1.1.4 - Chaleur spécifique

FLOTOW [7] a trouvé un changement de pente à 43°K pour la courbe $\frac{C}{T}$ en

fonction de la température T , C étant la chaleur spécifique. Ce changement de pente n'est d'ailleurs pas forcément lié à une anomalie [4].

1.1.5 - Paramètres cristallins

Aux températures inférieures à 665°C l'uranium cristallise dans le système orthorhombique avec une maille représentée à la figure 1 : c'est la phase α .

Par diffraction des rayons X, d'une part, et diffraction de neutrons d'autre part, BARRETT [8] a montré qu'entre $4,2^{\circ}\text{K}$ et 18°K les paramètres cristallins de l'uranium sont constants et que lorsque la température croît de 18°K à 45°K , le paramètre a décroît de $8 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}$, b décroît de $3 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}$ et c croît de $5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}$. Ainsi, tout en conservant la symétrie orthorhombique, la maille s'allonge dans la direction $[001]$ et se contracte dans les directions $[100]$ et $[010]$.

Il en résulte, pour les températures comprises entre $4,2^{\circ}\text{K}$ et 45°K un coefficient de dilatation volumique négatif.

En outre, on voit qu'à 43°K la transformation n'est pas du premier ordre.

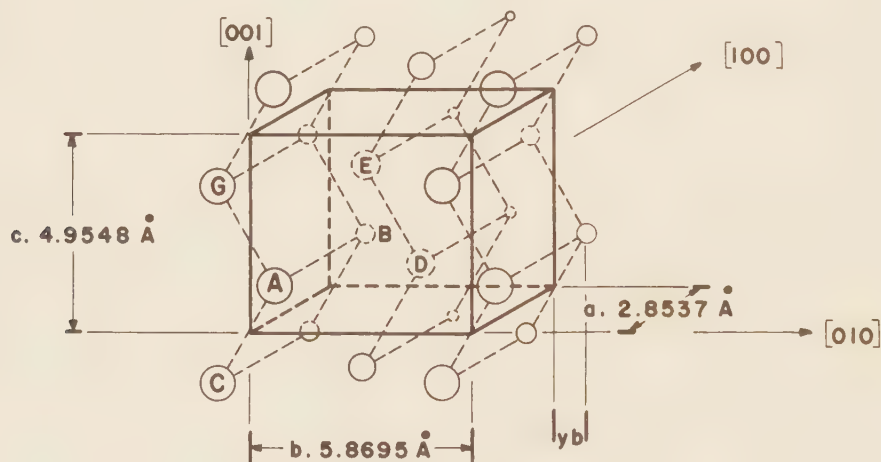


Fig. 1

1.1.6 - Constantes élastiques

Les expériences de FISHER et Mc SKIMIN [9] ont montré que les neuf modules d'élasticité C_{11} , C_{22} , C_{33} , C_{44} , C_{55} , C_{66} , C_{12} , C_{13} , et C_{23} présentent une forte anomalie à 43°K .

D'autre part, FISHER [10] a remarqué une anomalie à 22°K pour C_{11} , C_{55} et C_{66} . La variation de C_{11} en fonction de la température n'est pas réversible au-dessus de 22°K et l'anomalie est plus marquée au chauffage qu'au refroidissement (figure 2).

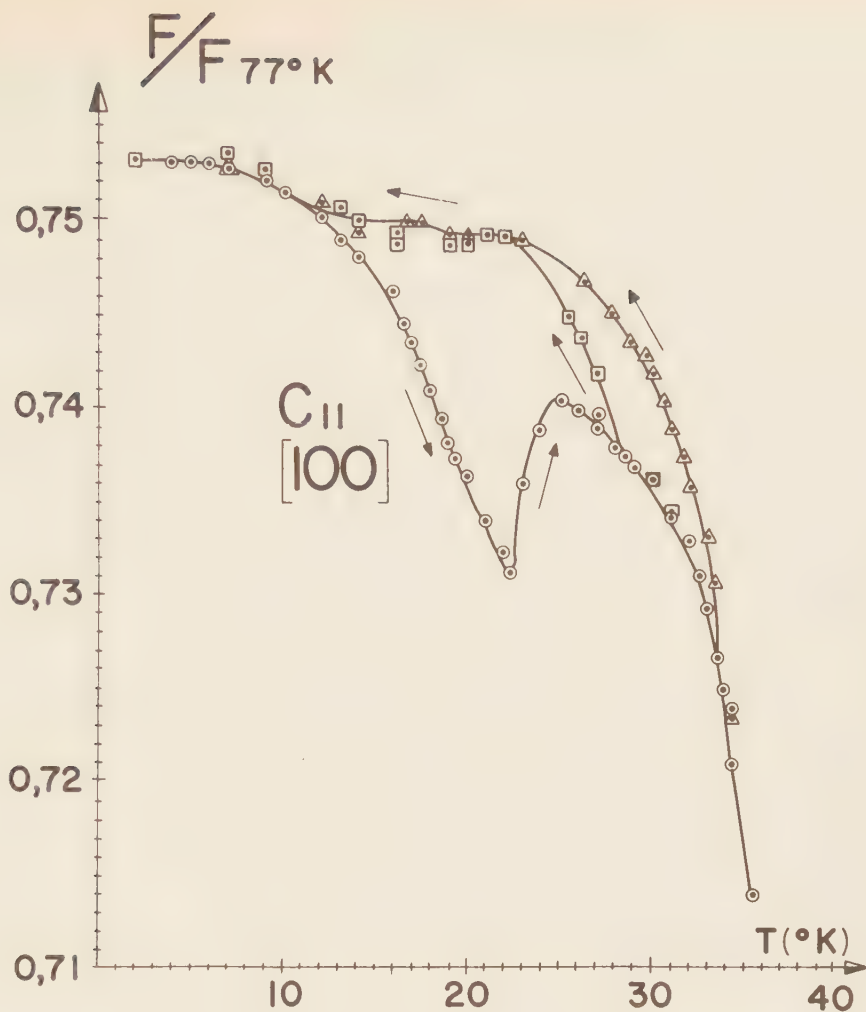


Figure 2

1.1.7 - Interprétation des anomalies

Plusieurs hypothèses ont été avancées pour expliquer ces anomalies.

Certains auteurs pensent à une transformation magnétique. Les expériences de diffraction des neutrons [8] ne confirment, ni n'infirmement cette hypothèse.

D'autres pensent [9] à un changement de phase, mais la structure de l'uranium reste orthorhombique et la transformation demeure du premier ordre.

Un modèle a été proposé par GEBALLE, MATTHIAS, ANDRES, FISCHER, SMITH et ZACHARIASEN [20] d'une part et GARNER et SMITH [62] d'autre part.

Ces auteurs font intervenir la supraconductibilité de l'uranium par l'intermédiaire d'un réseau de "filaments" supraconducteurs. Ils supposent deux phases de structure orthorhombique dont l'une α_0 correspond aux très basses températures, inférieures à 43°K. Les "filaments" supraconducteurs sont formés par de l'uranium en phase α maintenu à l'état métastable par les contraintes dues au refroidissement des échantillons. Cette phase α ne présente aucune anomalie à 43°K, ce qui explique que la température de changement de phase $\alpha_0 \rightarrow \alpha$ serait abaissée lorsque la pression augmente ; ainsi la température de

transition état normal-état supraconducteur augmente avec la pression. Les autres anomalies physiques de l'uranium s'expliqueraient par la coexistence des deux phases.

1.2 - Expériences de JOUSSET

1.2.1 - Création d'interstitiels par trempe

Lorsqu'on plonge un échantillon d'uranium dans de l'hélium liquide, la température du métal traverse, en général rapidement, le domaine compris entre 18°K et 50°K dans lequel se présentent différentes anomalies que nous avons décrites.

La maille se dilate suivant $[100]$ et $[010]$ alors qu'elle se contracte suivant $[001]$. Le métal subit un écrouissage qui produit des défauts ponctuels. En effet, l'anisotropie de la dilatation entraîne une déformation de chaque grain. Des estimations assez simples montrent que les contraintes induites dépassent la limite élastique du métal. Elles sont relaxées par glissement de dislocation $[11]$ $[12]$ ou maclage, avec création de défauts ponctuels $[13]$. Ces défauts sont retenus dans le réseau à 4,2°K.

Le sodium présente un phénomène analogue quand il est rapidement refroidi à 3°K. FILBY et MARTIN $[14]$ interprètent le recuit (entre 5°K et 15°K) des défauts créés comme étant celui de défauts ponctuels créés par écrouissage lors de la transformation martensitique $[15]$ du sodium.

Enfin, des considérations stériques montrent que les interstitiels dissociés possibles doivent avoir, dans l'uranium, un axe parallèle aux plans $[100]$. La figure 3 montre les configurations les plus probables $[4]$.

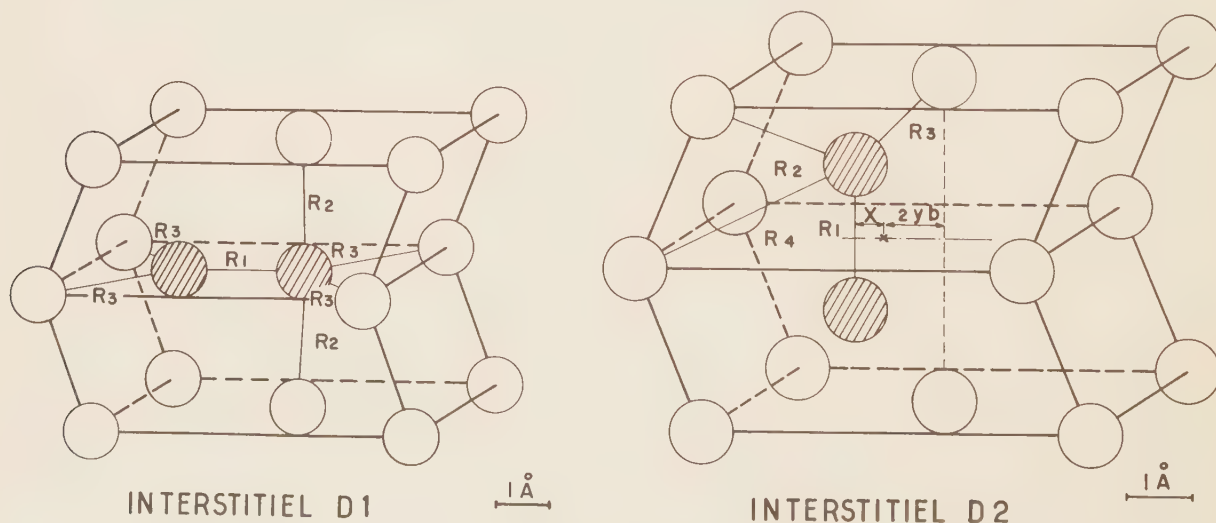


Figure 3

1.2.2 - Expériences de trempe

Les expériences de JOUSSET [18] [19] [4] ont montré que la résistance électrique de l'uranium augmente lorsqu'on trempe ce métal de 100°K à 4,2°K.

Les échantillons étudiés étaient de l'uranium de différentes puretés, la concentration totale en impuretés variait de $2,3 \cdot 10^{-3}$ à $5 \cdot 10^{-3}$ impureté par atome. En outre, les échantillons les plus purs avaient subi des traitements physiques divers tels que l'écrouissage, les recuits en phase α ou la trempe depuis la phase β .

Pour observer un effet de trempe, il faut tremper à partir d'une température supérieure à 20°K. Puis, entre 20°K et 40°K, l'augmentation de résistivité varie avec la température de trempe. Au delà de 40°K, cette augmentation de résistivité ne varie qu'avec la vitesse de trempe et seulement lorsque celle-ci est faible, de l'ordre de 10 degrés par seconde.

Les propriétés des défauts trempés ont été étudiées par recuits jusqu'à la température ordinaire parfois, mais toujours jusqu'à une température supérieure à 25°K. On distingue ainsi deux stades de recuit

- le premier de 4,2°K à 25°K caractérisé par la guérison de 85 % de l'augmentation de résistivité introduite par la trempe,
- le second de 25°K à 40°K environ caractérisé par une augmentation de résistivité (entre 25 et 30°K), suivie d'une stabilisation de la résistivité (entre 30 et 39°K) et d'une diminution jusqu'à l'annihilation totale de l'augmentation de résistivité. L'observation du second stade ainsi décrit ne peut se faire que par comparaison entre un échantillon trempé et un autre, en uranium de même nature physique et chimique (servant d'étalon) mais n'ayant pas été trempé. La mesure de résistivité se fait à la température même de recuit. En effet, si les mesures se font après plongée dans l'hélium liquide (4,2°K), pour les températures supérieures à 20°K, l'effet de trempe se superpose à l'effet de recuit.

A l'intérieur du premier stade, les mesures les plus fines mettent en évidence quatre sous-stades dont les domaines de température et les énergies d'activation sont portées au § 5.2., (*) où nous les comparons à nos résultats sur les irradiations aux particules α .

Après l'étude de la trempe elle-même, puis celle des recuits, la troisième partie des expériences de JOUSSET [4], concernait l'influence des impuretés. Il apparaît trois modifications sur les résultats précédents lorsqu'on introduit 20 ou $200 \cdot 10^{-6}$ atome d'or par atome d'uranium.

- D'abord, la résistivité induite par trempe augmente. Ce qui peut s'expliquer en termes de complexes interstitiels-impuretés. L'augmentation de résistivité doit être d'autant plus grande qu'il y a des atomes d'impuretés de nature telle que le couple interstitiel-impureté est plus résistant que l'interstitiel seul.

- Ensuite, au cours du premier sous-stade, entre 4,2°K et 12°K, la résistivité augmente avec la température de recuit. On peut expliquer ce phénomène de la même manière que le stade II. Les complexes interstitiels-impuretés (en l'occurrence interstitiels-

(*) Les références de pagination sont portées sur la table des matières.

atomes d'or) doivent être moins résistants que ne le sont l'interstitiel et l'atome d'impureté nettement séparés.

- Enfin, le stade I est décalé vers les températures plus fortes et la résistivité minimale, à la fin du stade I, augmente. Cette augmentation s'explique de la même manière que celle de la résistivité induite par trempe.

1.2.3 - Interprétation de l'effet de trempe

L'hypothèse d'une transformation de phase (phase α_0) n'explique guère l'analogie entre les recuits des défauts de trempe et ceux des défauts créés par irradiation aux électrons [22] [23] ou aux neutrons [24] [25] [26]. Cette analogie concerne l'allure des recuits isochrones, on retrouve dans les deux types de recuit les mêmes stades.

Pourtant, si un changement de phase ou une transformation magnétique peuvent être la cause des anomalies à basse température, il reste que les défauts créés par trempe sont très certainement de nature ponctuelle.

CHAPITRE II

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

2.1 - Echantillons

2.1.1 - Géométrie des échantillons

Les échantillons à irradier sont des lames d'uranium dont il faut définir les dimensions de telle sorte que certaines conditions soient remplies.

Il faut d'abord que les épaisseurs ne dépassent pas nettement le double du parcours moyen des particules α , soit une vingtaine de microns, pour que les concentrations en défauts soient maximales et uniformes. L'épaisseur des échantillons est de l'ordre de 25 μ , leur longueur étant de 3 à 5 cm, leur largeur de 3 à 5 mm, pour que leur résistance soit assez grande.

DWORSCHAK et al. [28] ont trouvé que la taille des échantillons a une influence sur la mesure de résistivité électrique de métaux irradiés. En ce qui concerne notamment les expériences de recuit des dégâts d'irradiation, il ne faut pas que l'épaisseur des échantillons soit de l'ordre de grandeur du libre parcours des électrons dans le métal.

On sait que la résistivité ρ vaut :

$$\rho = \frac{m v}{n e^2 \ell}$$

où e est la charge de l'électron dont la masse est m et la vitesse v , ℓ est le libre parcours moyen électronique et n est la densité électronique par unité de volume. Cette densité n est de l'ordre de quelques dixièmes à quelques unités par atome au maximum.

Sachant que ρ est de l'ordre de 2 $\mu\Omega$ cm à 4°K, on vérifie que ℓ est très nettement plus petit que l'épaisseur des échantillons qui peuvent être considérés comme massifs.

Le volume et la masse des échantillons sont petits par rapport à ceux des porte-échantillons, ainsi que nous le verrons. C'est pourquoi nous ne considérerons que plus tard les consommations en hélium liquide dues à l'introduction des échantillons.

2.1.2 - Montage des échantillons

Sur les échantillons sont soudés, électriquement, par points, quatre fils de platine de 0,1 mm de diamètre. Auparavant, le platine a été recuit quelques minutes aux environs de 700°C et l'uranium a été décapé électrolytiquement pour enlever la couche d'oxyde.

Le schéma de l'échantillon est donné sur la figure 4 a. Deux des fils de platine permettent le passage du courant électrique dans l'échantillon et les deux autres permettent la mesure de la différence de potentiel dans le métal.

Certains échantillons sont divisés en deux parties. L'une d'elle n'est pas irradiée, elle sert de témoin. Cinq fils de platine, toujours de 0,1 mm de diamètre y sont soudés dont trois servent à la mesure de tension aux bornes de chacune des parties. La figure 4b schématise ce montage.

Avant de placer les sources radioactives de part et d'autre des échantillons, on enveloppe ceux-ci dans du polycarbonate (*) dont les propriétés d'isolement électrique n'ont pas été altérées par irradiation dans l'hélium liquide.

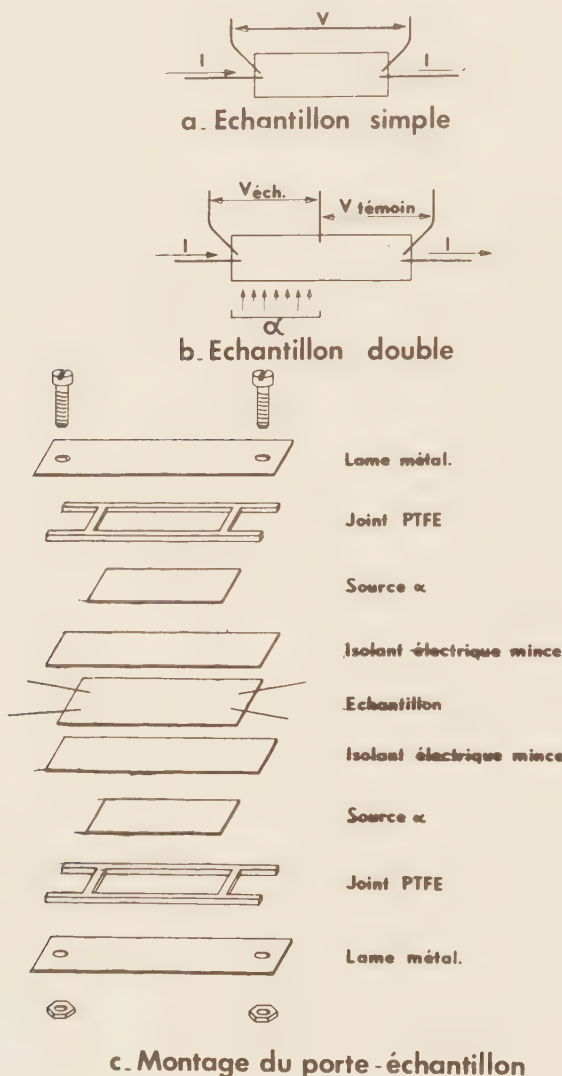


Figure 4

(*) Makrofol

2.1.3 - Porte-échantillons

2.1.3.1 - Description

Nous avons utilisé deux types de porte-échantillons :

Dans le premier cas, le porte-échantillon est simple : l'échantillon et ses deux sources radioactives sont fermement maintenus ensemble à l'aide de vis et écrous entre deux lames métalliques de 0,5 mm d'épaisseur, 5 mm de large et 6 cm de long. Ces lames, en acier inoxydable, sont isolées électriquement par du vernis 7031 (*) appliqué au pinceau et durci par étuvage de quelques minutes à 100°C.

Des joints en PTFE (polytétrafluoroéthylène) (**) améliorent le maintien par élasticité des lames métalliques. Ces joints dont la forme est donnée à la figure 4 c sont collés aux sources radioactives pour faciliter de plus la manipulation de celles-ci. Nous avons alors utilisé de la colle P.R. 9244/04 (***) dont le durcissement est rapide et les qualités à basse température bonnes.

Dans le second cas, le porte-échantillon est muni d'un four, ces joints en PTFE sont supprimés, les lames métalliques sont en cuivre. Les sources radioactives sont collées sur les lames dont une partie a été élargie à cet effet. Sur l'une de ces lames, de l'autre côté de la source, nous avons collé une résistance chauffante. Celle-ci est un fil de constantan d'une vingtaine de centimètres de long ; de 0,2 mm de diamètre, et d'une dizaine d'ohms de résistance électrique. Elle permet le chauffage du porte-échantillon et de l'échantillon lors des recuits de celui-ci. Sur l'autre lame de cuivre, à côté de la source qui y est collée, nous avons placé un thermocouple. Ce thermocouple soudé à l'alliage de Wood est constitué par un fil de chromel isolé par une couche de vernis et un fil en alliage or-fer isolé dans une gaine de soie. Ces fils ont 0,02 mm de diamètre. Sur leur plus grande partie, ils sont placés dans une gaine en laine de verre d'environ 2 mm de diamètre, ce qui facilite leur manipulation.

Le montage des échantillons dans les porte-échantillons se fait en boîte à gants étanche. La figure 4 c, correspondant à un porte-échantillon simple, schématise l'ensemble qui sort de la boîte à gants de contrôle de non-contamination. Cet ensemble comprend donc le dispositif de fixation et l'échantillon dont les fils de mesure de tension électrique et ceux d'arrivée de courant dépassent du bloc d'une longueur d'environ 2 cm.

2.1.3.2 - Montage des porte-échantillons sur les cannes

Les porte-échantillons sont plongés dans l'hélium liquide, ils sont reliés aux autres parties du dispositif, évidemment placées à l'extérieur du cryostat, par des cannes. Celles-ci sont constituées principalement par des tubes en acier inox de 2,8 x 3 mm de diamètre.

Dans la canne passent les fils électriques (passage du courant, mesure de potentiel et chauffage du four de recuit). Ces fils sont placés dans une gaine en laine de verre d'environ 2 mm de diamètre. Les fils de thermocouple, placés dans une autre gaine, passent

(*) Référence de la GENERAL ELECTRIC

(**) Teflon

(***) Référence de PHILIPS.

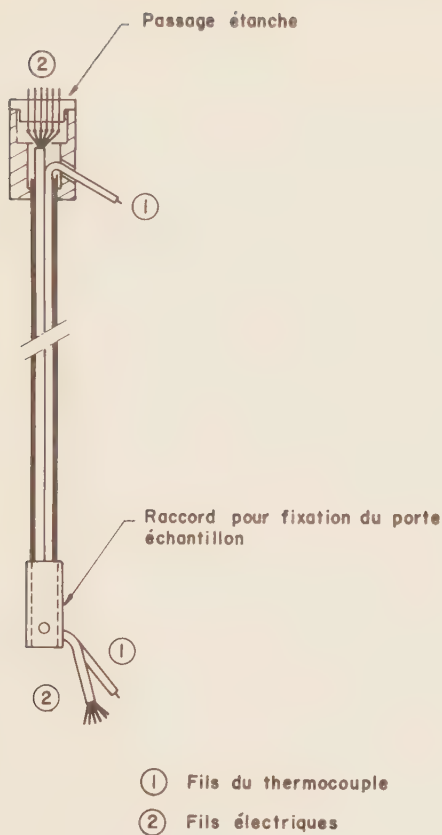


Figure 5

également dans la canne. Tous ces fils sortent par le trou situé à l'extrémité inférieure, sur le côté du raccord femelle.

A l'extrémité supérieure de la canne est brasé un petit tube en cuivre de 8 x 10 mm de diamètre au bout duquel est soudé à l'étain une perle de passage étanche pour les fils électriques. La gaine contenant les fils du thermocouple sort par un orifice percé sur le flanc du tube de cuivre. Ce trou est ensuite bouché avec de l'araldite.

A l'extrémité inférieure de la canne est soudé, à l'étain, un raccord fileté femelle sur le côté duquel est percé un trou d'environ 3 mm de diamètre.

Par l'intermédiaire d'un raccord fileté mâle qui en est solidaire, un porte-échantillon est vissé à cette extrémité. Cette opération se fait à l'air libre, dans le laboratoire où se trouve le dispositif d'irradiation. Les différents fils du porte-échantillon sont alors soudés par l'étain aux fils correspondants de la canne. Les thermocouples sont collés près de l'échantillon. L'isolement des fils au niveau des soudures est assuré par une couche de vernis 7031 appliqué au pinceau ; les autres parties des fils sont protégées par des gaines souples en laine de verre. Après quelques minutes nécessaires au

séchage du vernis, l'échantillon est plongé dans l'hélium liquide. La vitesse de refroidissement est estimée à environ 30 à 50 degrés par seconde.

2.1.4 - Traitement des échantillons d'uranium

2.1.4.1 - Echantillon brut de laminage

L'uranium a été purifié par fusion de zone [29] par CLOTTES [30] [31]. Le métal ainsi obtenu est pur à 99,8 % environ. Le tableau I indique les principales impuretés qui y sont incluses ; l'analyse chimique a été faite par spectrométrie de masse au Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY par la Section d'Etudes Analytiques (Service de Chimie).

Ensuite, cet uranium a été laminé jusqu'à 0,04 mm d'épaisseur. Entre chaque passe, pour les faibles épaisseurs, l'échantillon est recuit quelques heures aux environs de 550°C.

Impureté	Al	Fe	Cu	Mg	Ni	Cr	Na	Si	Pb	Ag	B	C	P	O	N
Concentration 10 ⁻⁶ atom.	880	168	100	99	80	36	17	17	3	1	2	594	380	235	14

Impuretés dans l'uranium de fusion de zone

L'amincissement final permettant d'obtenir 20 microns environ, a été réalisé électrolytiquement. Nous avons utilisé un bain acéto-chromique, réfrigéré à environ $+10^{\circ}\text{C}$, dont la composition est la suivante :

50 g	anhydride chromique
600 cc	acide acétique
60 cc	eau distillée.

La tension électrique est de 20 volts.

Nous obtenons ainsi des échantillons dont l'épaisseur finale est d'une uniformité telle que des mesures au palmer suffisent pour suivre la marche de l'opération qui dure plusieurs minutes.

Enfin, bien que l'uranium soit conservé dans une enceinte hermétique sous vide dynamique de l'ordre de quelques 10^{-3} torr, il peut s'oxyder quelques semaines après son amincissement. Il faut donc le décaper avec le même bain acétochromique, mais seulement pendant quelques secondes, au moment de la préparation de sa mise en irradiation.

2.1.4.2 - Echantillon recuit en phase α

CLOTES [30] a montré que la température de recristallisation de l'uranium de fusion de zone est de 270°C . D'autre part, la température de changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ de l'uranium se situe à 660°C . Pour obtenir des échantillons d'uranium recuits en phase α , nous avons traité l'uranium une douzaine d'heures aux environs de 600°C . Ces recuits ont lieu sous vide secondaire de l'ordre de quelques 10^{-6} torr.

L'étude métallographique concernant l'efficacité de ce recuit est reportée au chapitre III (paragraphe 3.4.1.2) (*).

2.2 - Sources radioactives

2.2.1 - Description des sources

Les particules α que nous avons utilisées sont émises par la désintégration des noyaux d'américium-241. Cet américium est déposé électrolytiquement sur un support de platine de $50\ \mu$ d'épaisseur. Ces dépôts électrolytiques de 6 mm de large et 21 mm de long, ont été réalisés au Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-aux-ROSES par la Section d'Etudes Chimiques Radioactives (**).

Les techniques de fabrication de ces sources sont telles qu'elles ne sont parfaitement homogènes. Nous avons effectué une alphagraphie d'une de ces sources suivant la méthode décrite au § 2.2.3 (voir figure 6-a).

Pour éviter la contamination, nous avons enveloppé ces sources dans du polycarbonate (***) de $2\ \mu$ d'épaisseur. Ce polycarbonate se colle à lui-même après badigeon-

(*) Les références de pagination sont portées à la table des matières

(**) Nous remercions M. CHESNE et Melle VALENTIN qui nous ont fourni ces sources.

(***) Makrofol

neage au toluène. Il ne tient guère plus d'une dizaine de jours à une irradiation dans l'air, mais il empêche la contamination au cours des manipulations ultérieures.

En effet, si l'américium est bien adhérent pour les dépôts très minces, il ne l'est plus totalement pour les dépôts tels que les nôtres qui pèsent environ $200 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Ensuite, ces sources sont mises dans des sachets assurant une protection mécanique durable, sans arrêter les particules α . Nous avons choisi l'aluminium épais de $4,5 \mu$. Notre étude, réalisée avec la collaboration du Service de Technologie au Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY (*), nous a conduits à adopter des sachets fermés sur trois côtés par pliage et laminage à froid. Les autres modes de soudure tels que l'étain, les alliages à bas point de fusion, le laser, etc ... n'ont pas abouti, pour de l'aluminium de cette épaisseur.

Après l'introduction des sources radioactives, ces sachets sont scellés avec de la colle P.R. 9244/04 (**) à durcissement rapide et gardant ses propriétés aux très basses températures.

Rappelons que ces opérations d'ensachage se font en boîte à gants étanche.

Pour les expériences les plus récentes, nous avons utilisé des sources vendues dans le commerce (***) dont l'homogénéité est très grande et la manipulation aisée car ces sources sont recouvertes d'environ 2μ de palladium.

2.2.2 - Propriétés du noyau d'américium-241

La désintégration du noyau d'américium a une période de 458 ans. Elle s'accompagne de rayons X et produit des noyaux de recul, des rayons gamma dont le spectre est donné par le tableau II et des particules α dont le spectre est donné par le tableau III. Dans ce dernier tableau on voit que près de 98 % des particules α ont une énergie de $5,45 \pm 0,03$ MeV.

CANO et DRESSEL [32] ont étudié les propriétés des dépôts électrolytiques d'américium. Ils ont observé que les noyaux de recul sont arrêtés par $300 \text{ \AA}$ environ de matière condensée. Ainsi les pochettes contenant les sources arrêtent les noyaux qui ne peuvent donc pas créer de défauts dans les échantillons à irradier.

Il nous faut maintenant tenir compte de l'effet de ces pochettes quant à l'absorption de particules α , laquelle se traduit par une modification de leur énergie et de leur nombre.

2.2.3 - Énergie des particules α

Nous avons vu que le faisceau de particules α émis par la source d'américium est pratiquement monocinétique puisque 98 % des particules ont une énergie de $5,45 \pm 0,03$ MeV.

En traversant la feuille de polycarbonate (2μ) et celle d'aluminium ($4,5 \mu$), ces particules perdent de l'énergie principalement par freinage électronique.

(*) Nous remercions M. SCHLEY pour cette étude.

(**) Référence de PHILIPS.

(***) Ionotron.

TABLEAU II

Energie en keV	16	33	43	103	113	130	159	210	330	370
Activité en Curie/mg	1,5	0,1	0,006	0,09	0,001	$2,5 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$	0,015	$1 \cdot 10^{-4}$

Emission gamma de l'américium

TABLEAU III

Energie en MeV	5,534	5,500	5,477	5,435	5,378	5,311
Intensité relative (%)	0,35	0,23	85	12,7	1,75	0,01

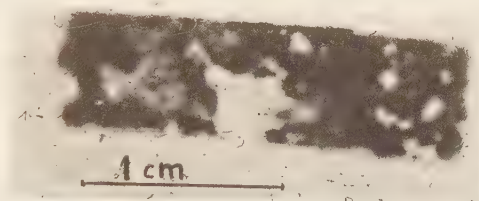
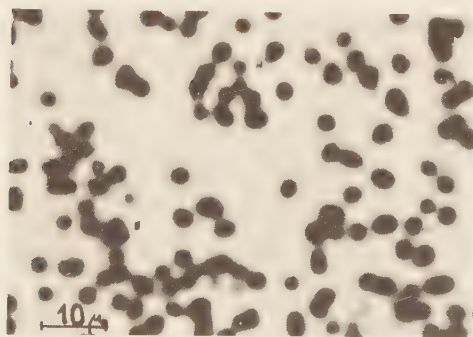
Spectre d'énergie des particules α de l'américium**a — Vue macrographique****b — Micrographie [DéTECTEUR: nitrate de cellulose]**

Figure 6

Des mesures de perte d'énergie de particules α ont été faites par BARKAN [33]. Une particule d'énergie initiale E à l'entrée de la tranche de profondeur x perd une énergie dE après une traversée dx dans un matériau donné. On trouve que pour $E = 5,5$ MeV, les particules α perdent dans l'aluminium $800 \text{ keV (mg. cm}^{-2})^{-1}$ pour x petit. Pour les énergies plus faibles, ce taux de perte augmente et on peut estimer que l'énergie vaut, après traversée, entre 3,9 et 4,3 MeV. Cette estimation est peu précise ; aussi avons-nous effectué une spectrographie des particules α (*) pour les sources fabriquées au Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-aux-ROSES.

La figure 7 montre le spectre obtenu. Pour éliminer les effets de géométrie de mesure, nous avons fait deux expériences en recouvrant la source radioactive d'écrans en plomb percés de trous respectivement de 1 mm et de 8 mm de diamètre. Les courbes obtenues se recouvrent exactement. Sur la figure 7, nous trouvons que le faisceau de particules α reste approximativement monocinétique avec une énergie moyenne de 4,05 MeV. Le spectre d'énergies s'élargit cependant puisque le maximum correspond à 4,6 MeV. Pour les sources Ionotron du commerce, l'énergie moyenne est de 4,5 MeV.

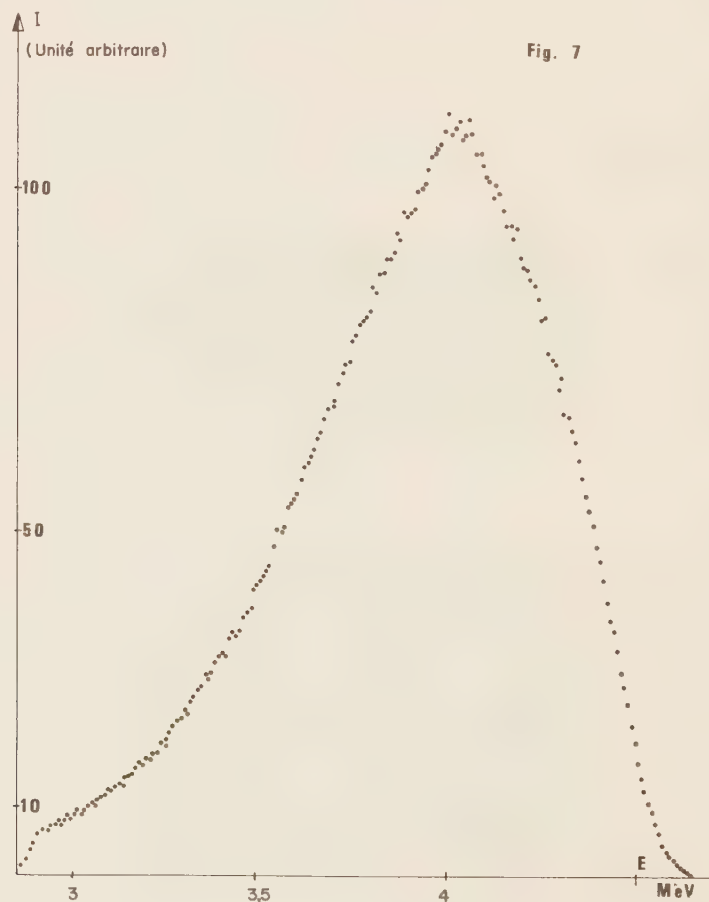


Figure 7

(*) Nous remercions M. F. SCHMITZ pour son aide dans l'étude de la spectrographie.

2.2.4 - Flux de particules α

Différents expérimentateurs ont étudié l'enregistrement des traces de particules accélérées dans les solides [34] [35]. Les théories [36] montrent que l'attaque chimique des corps irradiés peut se faire préférentiellement dans les régions entourant les trajectoires des particules.

Pour obtenir des traces, il faut définir l'isolant d'études et l'énergie maximale des particules incidentes. En effet, la création de zones endommagées ne se fait que pour un domaine d'énergie bien défini pour un isolant donné. Suivant les études faites par MORY [37] nous avons utilisé du nitrate de cellulose pour lequel l'énergie des particules α ne doit pas excéder 3 MeV.

Il faut donc ralentir ces particules ; en plus des pochettes contenant les sources radioactives, nous avons placé de l'aluminium (9μ) et du polycarbonate (6μ). Compte-tenu de la période de l'américium nous avons estimé le temps de pose à 30 secondes. L'expérience montre que, selon la source à mesurer, ce temps varie de 15 à 45 s.

Les traces des particules sont révélées chimiquement par une solution de soude à 250 g.l^{-1} . L'attaque se fait entre 52°C et 58°C pendant une minute environ. Une durée d'attaque plus longue élargit les traces dont la figure 6-b montre l'aspect micrographique. En effet, on compte ces traces par microscopie et le flux mesuré est égal au rapport du nombre de traces à la surface d'observation. Ce flux mesuré doit être multiplié par un facteur correspondant à l'absorption des ralentisseurs.

Pour cela, nous avons pris deux épaisseurs de ralentisseur pour lesquelles l'enregistrement des traces était possible. Nous avons porté sur la figure 9 les flux mesurés en fonction de l'épaisseur. En extrapolant la droite obtenue jusqu'à la valeur correspondant à l'épaisseur d'une pochette ($4,5 \mu$), et à une épaisseur nulle (source nue) ; nous trouvons que le coefficient d'absorption est égal à 2,5.

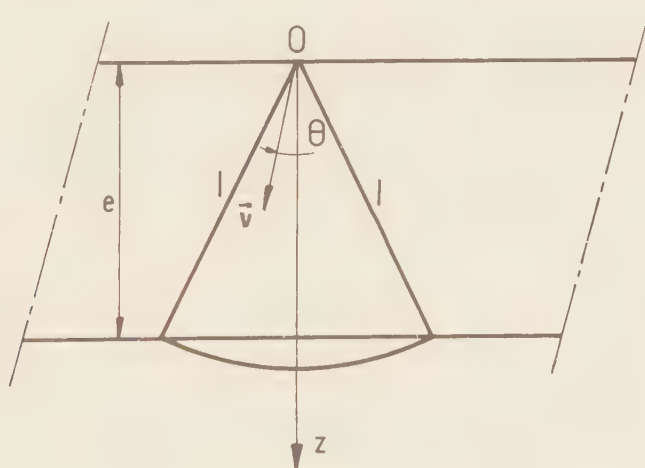


Figure 8

Ce résultat peut se vérifier par le calcul. Considérons une particule arrivant, à l'entrée du ralentisseur, au point O (figure 8). Le vecteur vitesse $\underline{v}$ en O fait un angle θ avec la normale Oz à la surface d'entrée. Le trajet de la particule est la droite support de $\underline{v}$. Pour que la particule traverse le ralentisseur d'épaisseur e , il faut que l'angle θ soit tel que le parcours $x = e \cos \theta$ soit supérieur au parcours maximal ℓ des particules α dans le ralentisseur. On peut donc dire que la probabilité p pour qu'une particule traverse le ralentisseur est égale à $p = \frac{\Omega_1}{2\pi}$ où Ω_1 est l'angle solide limite correspondant à la sphère de rayon ℓ et centré en O ; 2π est l'angle solide total en O.

$$\text{Nous avons } \Omega_1 = 2\pi (1 - \cos \theta_1) \approx 2\pi \left(1 - \frac{e}{\ell}\right)$$

d'où

$$p = 1 - \frac{e}{\ell}$$

En négligeant l'effet du polycarbonate, nous obtenons, pour $\ell = 20 \mu$ dans l'aluminium,

$$p_1 = 1 - \frac{4}{20} = \frac{4}{5} \quad \text{après le passage du sachet contenant la source et}$$

$$p_r = 1 - \frac{14}{20} = \frac{3}{10} \quad \text{après tous les ralentisseurs.}$$

La probabilité p est aussi égale au rapport du nombre n_o de particules incidentes au nombre n de particules sortantes. On a ainsi le coefficient d'absorption $\frac{p_1}{p_r} = \frac{8}{3} = 2,67$.

Le parcours maximal dans le polycarbonate n'est pas connu, mais il doit être tel que ce rapport est diminué. Le rapport du flux irradiant l'échantillon au flux mesuré est ainsi égal à 2,5.

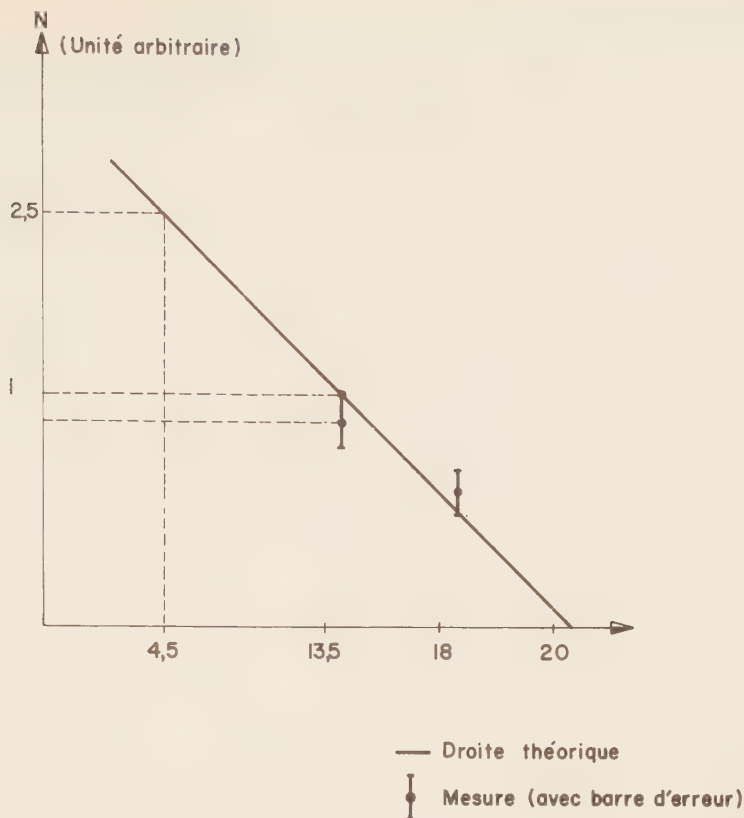
Les sources radioactives n'étant pas homogènes, nous avons pris des champs d'observation au hasard et le flux est calculé lorsque le nombre total de traces comptées dépasse 3000 (*). Le tableau IV donne les différentes valeurs des flux, valeurs variant de 1.10^5 à $1.10^6 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, pour les sources fabriquées au Centre de FONTENAY-aux-ROSES. Les sources Ionotron ont un flux de $3.10^6 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, difficile à mesurer avec précision par notre méthode car sa valeur trop forte nécessite des temps d'irradiation très courts. Il a seulement été calculé d'après les mesures d'activité et celles des dimensions.

TABLEAU IV

Repère	E ₁	E ₂	F ₁	F ₂	D ₁	D ₂	H ₁	H ₂
Flux en $\alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$	$5,7.10^5$	$5,5.10^5$	$3,0.10^5$	$1,1.10^6$	$3,9.10^5$	$3,9.10^5$	$5,6.10^5$	$6,2.10^5$

Flux des sources α d'américium

(*) L'imprécision sur la valeur du flux ne vient alors que de l'inhomogénéité des sources.



ABSORPTION DES PARTICULES ALPHA DE L'AMERICIUM DANS L'ALUMINIUM

Figure 9

Ces flux sont très faibles, puisque, par exemple, dans un réacteur nucléaire, le flux de neutrons dépasse facilement $10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et dans un accélérateur d'électrons le flux dépasse $10^{12} \text{ e.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Nous sommes ainsi contraints de faire durer nos expériences pendant plusieurs semaines et même plusieurs mois.

2.3 - Cryostat et accessoires

2.3.1 - Le cryostat et ses aménagements

L'hélium liquide, dans lequel baignent les échantillons à irradier, est contenu dans un vase de 150 litres comportant un col de 100 mm de diamètre, ce col a été aménagé pour permettre l'irradiation simultanée de plusieurs échantillons pour chacun desquels l'expérience est très longue.

Un bouchon en acier inoxydable, représenté à la figure 10, a été fixé en haut de ce col. Un passage est réservé au siphon de remplissage en hélium liquide. Ce siphon reste à poste fixe pour éviter d'entraîner à l'extérieur une contamination éventuelle depuis l'intérieur du vase. Une vanne ouvre ou ferme le passage de l'hélium liquide dans le siphon ; en temps normal, elle est naturellement fermée.

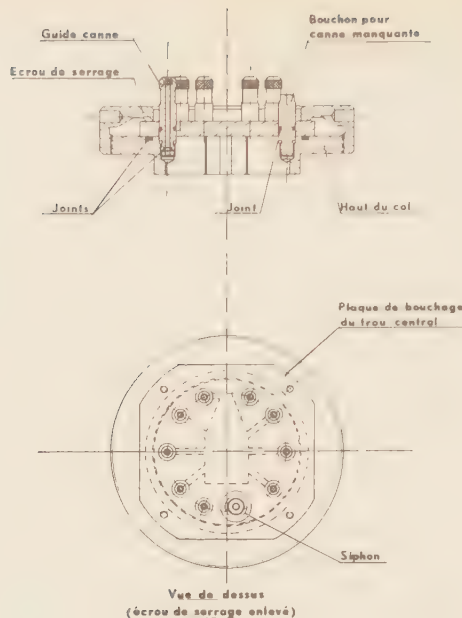


Figure 10

Les cannes porte-échantillons sont munies de guides qui se vissent sur le pourtour d'un large trou central permettant l'introduction ou la sortie d'un échantillon sans déranger les autres restant en place. Normalement, le trou central est bouché par une plaque, en acier inoxydable comme les guide-cannes, plaque elle-même serrée contre le haut du col par un grand écrou.

Les différents interstices créés par l'assemblage de ces pièces sont rendus étanches par des joints toriques en caoutchouc résistant à des températures de l'ordre de -40°C .

La consommation en hélium liquide est due tant au vase lui-même qu'à l'introduction des échantillons. Le cryostat est un vase Dewar dont la partie utile contenant l'hélium liquide est en cuivre. Ce vase Dewar baigne dans de l'azote liquide contenu dans une "garde" qui est elle-même un vase Dewar en acier inoxydable. Avant l'introduction des échantillons, nous avons mesuré que la perte journalière est de 3 %, soit de 4,5 litres. La mise en place de quatre à six cannes porte-échantillons élève cette consommation journalière à environ 3,5 % soit de 5 à 5,5 litres. Nous pouvons donc estimer que l'introduction d'un échantillon accroît la consommation d'environ 0,1 litre par jour – ce qui est négligeable devant la perte propre du vase.

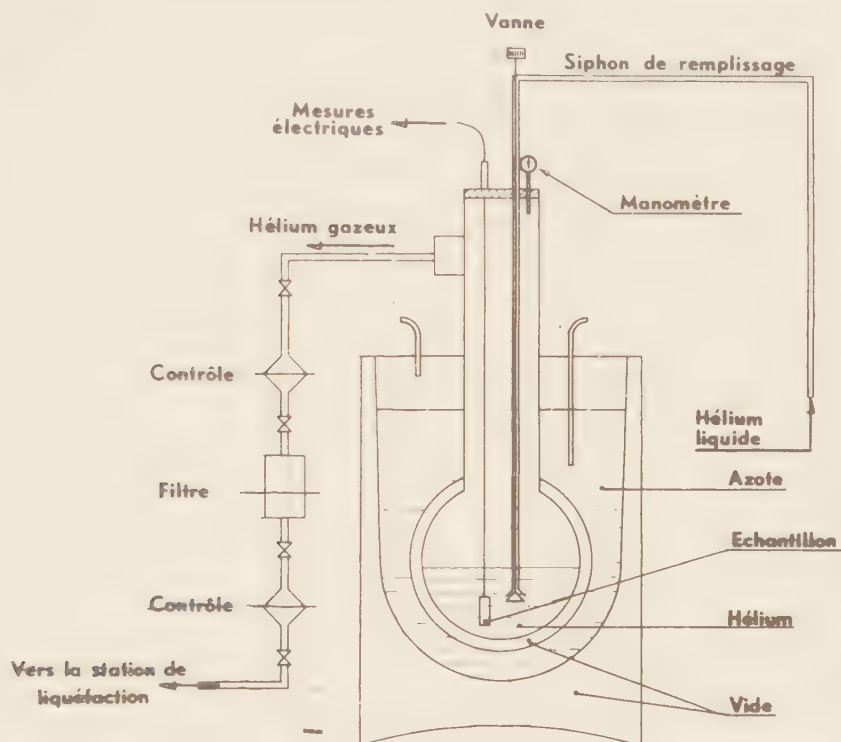
La garde d'azote, dont le volume total est de 300 litres, nécessite un complément journalier de 70 litres environ. Les autres aménagements du cryostat concernent l'hélium liquide, d'une part, la sécurité, d'autre part.

2.3.2 – Circuit de l'hélium

L'hélium gazeux s'échappant du cryostat par évaporation est récupéré à la station de liquéfaction. Il ne faut donc pas qu'il soit contaminé.

La figure 11 montre le dispositif de contrôle. Il s'agit de faire passer l'hélium

éaporé à travers deux filtres en papier buvard, facilement démontables pour en mesurer l'activité. Ces deux filtres de contrôle sont séparés par un filtre destiné à retenir les fines poussières radioactives. Toutes les soudures de cet ensemble ont été testées au détecteur par spectrographie de masse à l'hélium.



SCHEMA DU DISPOSITIF

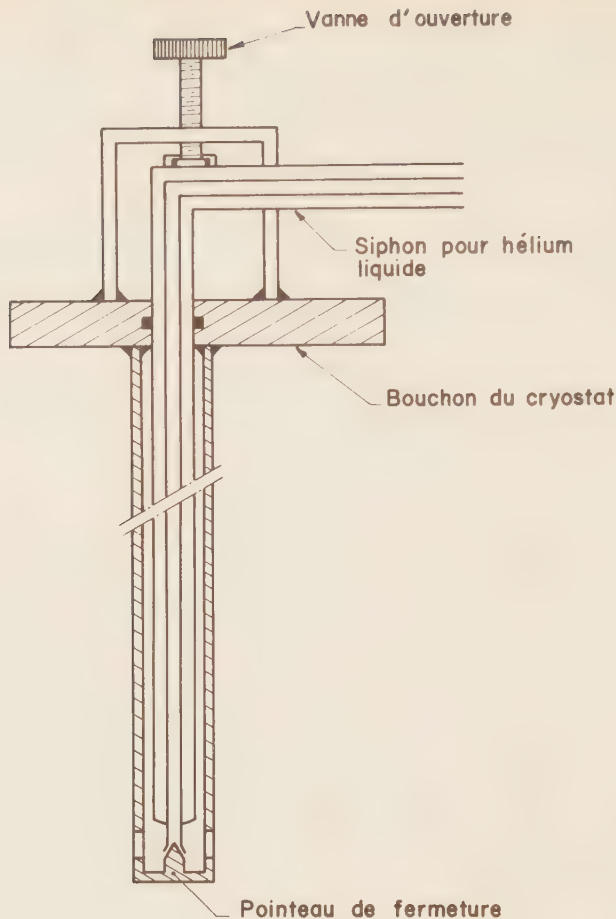
Figure 11

L'hélium liquide est introduit dans le cryostat à l'aide d'un syphon spécialement adapté à notre dispositif. Son orifice intérieur au cryostat peut être bouché par un pointeau solidaire du vase par l'intermédiaire d'un tube coaxial au syphon et vissé au bouchon décrit au § 2.3.1. . En soulevant ou abaissant le syphon par rapport à ce pointeau, l'orifice est ouvert ou fermé ; cette manoeuvre se fait à l'aide du dispositif de la figure 12.

2.3.3 - Pression de l'hélium

La température d'un liquide en équilibre avec sa vapeur dépend de la pression de celle-ci : la relation qui en résulte est le fondement de la thermométrie par mesure de tension de vapeur [38]. Les mesures concernant l'hélium [39] indiquent qu'au voisinage de la pression atmosphérique la variation de température est de 1,1 degré par atmosphère.

Un manomètre placé dans le vase n'indique aucune variation de pression supérieure à 50 g.cm^{-2} , sauf pendant les remplissages hebdomadaires en hélium liquide. L'inertie du manomètre ne permet pas des mesures de fluctuations rapides, mais, d'une façon générale,



PRINCIPE DE LA FERMETURE DU SIPHON D'HELIUM LIQUIDE

Figure 12

les mesures de pression du gaz ne donnent pas de variation de température supérieure à $0,05^{\circ}\text{K}$, sauf pendant quelques minutes au début des remplissages en hélium liquide. Nous répétons que les variations brusques ne peuvent pas être décelées.

Etant donné la fréquence des remplissages, la hauteur d'hélium liquide mesurée à l'aide d'une résistance au carbone placée au bout d'une canne, varie entre 30 et 55 cm. La pression hydrostatique au niveau de l'échantillon est donc constant, car la densité de l'hélium liquide est faible (0,125).

De ces mesures, nous pouvons estimer que la température au niveau des échantillons doit être comprise entre $4,2$ et $4,3^{\circ}\text{K}$.

2.3.4 - Sécurités

Le pouvoir de contamination de l'américium est très grand. Des mesures de sécurité rigoureuses doivent donc être prises.

Rappelons que l'hélium gazeux récupéré est contrôlé périodiquement toutes les trois semaines et lors de toute ouverture du cryostat, ce qui permet la détection d'une contamination éventuelle du cryostat.

En outre, le dispositif d'irradiation est placé dans un local dont les issues sont toutes fermées lorsqu'on ouvre le cryostat ou que l'on manipule de l'américium, même dans des sachets étanches.

Les rayons gamma émis par l'américium sont arrêtés par les différentes parois du cryostat qui constitue ainsi une protection biologique suffisante.

Le seul risque couru pendant l'irradiation ne peut venir que d'une éventuelle évaporation brutale de l'hélium, par exemple par manque d'azote liquide dans la garde. Le manomètre décrit précédemment prévient des surpressions éventuelles. De plus, si le vide d'isolement du vase venait à se détériorer, celui-ci s'échaufferait et vaporiserait l'hélium très rapidement en risquant de rompre l'étanchéité des pochettes d'américium. Un frigatron fonctionnant comme un thermocouple à très grande puissance est fixé sur la paroi extérieure de la garde d'azote liquide. Une rupture du vide entraînerait une baisse de température et déclencherait un signal d'alarme.

La figure 13 montre une vue de l'ensemble du dispositif avec en particulier les systèmes de sécurité.

Les agents du Service de Protection contre les Radiations sont présents lors de toute manipulation d'échantillons. Ils font des prélèvements d'aérosols et contrôlent la non-contamination extérieure des échantillons et des outils utilisés.

Aucune contamination, aucune rupture de vide d'isolement n'ont eu lieu durant toutes nos expériences.

2.4 - Montages électriques

2.4.1 - Appareils et circuit de mesures

Les tensions électriques se mesurent, par la méthode d'opposition, à l'aide d'un potentiomètre du type Diesselhorst (*) permettant, d'après les constructeurs, d'obtenir la précision :

$$\frac{\delta V}{V} = 1.10^{-5} \quad (I)$$

où V est la différence de potentiel mesurée.

Cet appareil permet de mesurer de 1.10^{-7} à 0,11 Volt. Pour pouvoir mesurer plusieurs tensions avec le même appareil, nous avons placé, en amont des bornes d'entrée, un commutateur mécanique à douze voies doubles, de qualité et de fabrication analogues à celles du potentiomètre.

(*) Référence 5389 R/Auto de TINSLEY

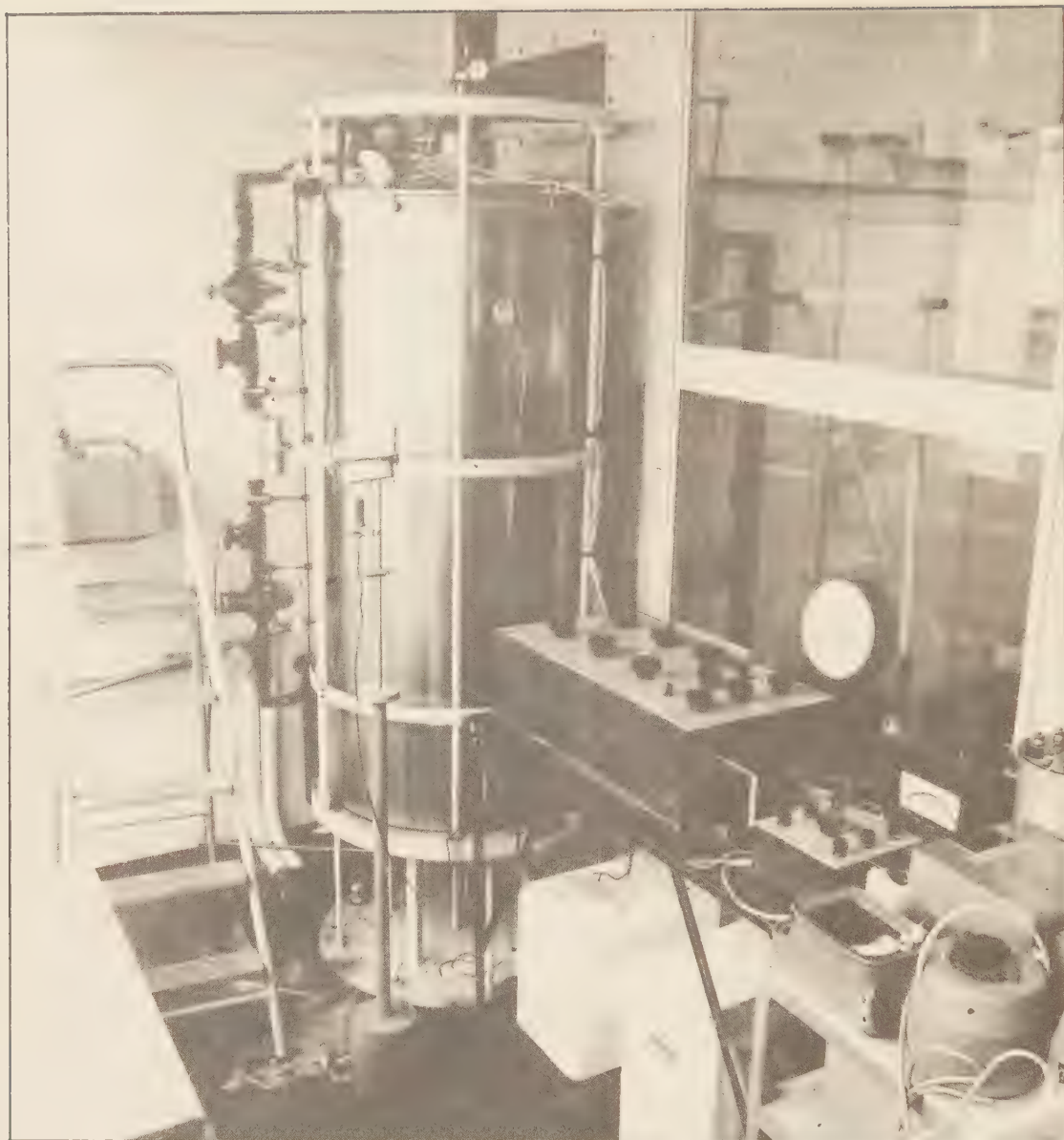


Figure 13

2.4.2 - Mesures des résistances électriques

Une résistance X , aux bornes de laquelle la tension V_x est parcourue par une intensité i . Il faut mesurer celle-ci à l'aide d'une résistance étalon E aux bornes de laquelle la tension est V_E . On a alors, d'après la loi d'Ohm,

$$X = \frac{V_x}{i} \quad (\text{II})$$

avec

$$i = \frac{V_E}{E} \quad (\text{III})$$

l'erreur relative sur X est alors :

$$\frac{\delta X}{X} = \frac{\delta V}{V} + \frac{\delta i}{i} \quad (\text{IV})$$

En fait, l'intensité i varie de façon aléatoire, car nous avons utilisé deux types d'alimentation électriques stabilisées en tension. La première comporte deux transistors ADZ 11 montés en base commune, tandis que la deuxième est un ensemble électronique TINSLEY. L'intensité i est stabilisée pour le premier montage, à environ :

$$\left(\frac{\delta i}{i} \right)_s = 1.10^{-3} \quad (\text{V})$$

et l'erreur relative sur i est $\frac{\delta i}{i} = \left(\frac{\delta i}{i} \right)_s + \frac{\delta V_E}{V_E} + \frac{\delta E}{E}$ (VI)

la quantité δi est la demi-différence de la variation de i entre deux mesures de V_E ; ces deux mesures encadrant une mesure de V_X .

La résistance étalon est donnée avec la précision de

$$\frac{\delta E}{E} = 1.10^{-4} \quad (\text{VII})$$

D'après (I), $\frac{\delta V_X}{V_X} = \frac{\delta V_E}{V_E} = 1.10^{-5}$

Ainsi, puisque $\frac{\delta X}{X} = \frac{\delta V_E}{V_E} + \frac{\delta V_X}{V_X} + \frac{\delta E}{E} + \left(\frac{\delta i}{i} \right)_s$ (VIII)

On a $\frac{\delta X}{X} \neq \left(\frac{\delta i}{i} \right)_s = 1.10^{-3}$ (IX)

Pour l'alimentation TINSLEY, cette précision est améliorée par un facteur égal à 2, car la stabilisation est meilleure :

$$\left(\frac{\delta i}{i} \right)_s \neq \frac{\delta X}{X} = 5.10^{-4} \quad (\text{X})$$

Les échantillons d'uranium ont une résistance de l'ordre de $X = 5.10^{-3} \Omega$, pour obtenir la plus grande sensibilité il faut que V_X soit le plus grand possible, donc l'intensité doit être forte : nous l'avons prise un peu inférieure à 1 A, pour éviter les échauffements dans les fils du circuit placés dans le cryostat.

L'ensemble du circuit de mesure est visible sur la figure 13. Le galvanomètre utilisé est du type A 15 (*) sensible à 1.10^{-9} A.

(*) Référence KIPP.

2.4.3 - Dispositif de recuit des échantillons

Pour recuire un échantillon, on le maintient au-dessus du bain d'hélium liquide et, le cas échéant, on dissipe une puissance électrique dans le four (voir 2.1.3.1.) pour l'obtention de la température désirée. Cela n'est nécessaire que pour les températures supérieures à 25°K.

Ce chauffage, dont la puissance dissipée est de l'ordre du watt, dure quelques minutes après lesquelles on replonge l'échantillon dans l'hélium liquide où on mesure sa résistance électrique.

Au 4.2., nous considérerons les résultats qu'on peut attendre d'une telle méthode.

La température est fournie par un thermocouple déjà décrit (2.1.3.1.). La sensibilité des thermocouples or-fer chromel est d'environ $17 \mu V$ par degré vers 5°K et une trentaine de μV par degré vers 40°K. Les températures de référence sont données par le bain d'hélium liquide et une enceinte thermostatée stabilisée à $35 \pm 0,2^\circ C$. On mesure la tension du thermocouple à l'aide du potentiomètre décrit plus haut.

D'après nos mesures, la stabilité de la température au cours des recuits est meilleure que 0,5°K.

CHAPITRE III

IRRADIATION DE L'URANIUM

3.1 - Rappels sur la variation de résistivité sous irradiation

3.1.1 - Calcul de la résistivité résiduelle induite par irradiation

Un champ électrique appliqué dans un métal modifie la distribution de vitesse des électrons. Les électrons subissent des chocs dus aux différentes perturbations de la périodicité idéale du réseau cristallin, à savoir l'agitation thermique (phonon) et les imperfections chimiques et physiques (impuretés, défauts ponctuels, dislocations, macles, joints de grains).

La résistivité électrique peut s'écrire [42] :

$$\rho = \frac{m}{ne^2} \cdot \frac{1}{\tau} \quad (I)$$

où e est la charge des électrons, n leur nombre par unité de volume, m la masse effective très peu différente de la masse classique des électrons pour leur vitesse de déplacement (vitesse de Fermi), $\frac{1}{2\tau}$ est le nombre de chocs par unité de temps.

Dans la mesure où les imperfections chimiques et physiques ne donnent pas des effets comparables à ceux des phonons, on peut écrire :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_r} \quad (II)$$

Cela revient à négliger l'interaction entre les deux types de chocs, car $\frac{1}{2\tau_0}$ est le nombre de chocs dus aux phonons par unité de temps et $\frac{1}{2\tau_r}$ celui des chocs dus aux imperfections pendant la même durée.

On obtient alors la loi de Matthiessen [41] :

$$\rho = \rho_i(T) + \rho_r \quad (III)$$

qui implique que les défauts ne modifient pas les modes de vibration des atomes. $\rho_i(T)$ est appelé résistivité idéale et ρ_r résistivité résiduelle.

Les expériences concernant divers métaux [43] [44] [53] confirment que cette loi est valable aux très basses températures ($\rho_r \gg \rho_i$) et aux températures suffisamment élevées pour que l'influence des imperfections soient négligeables ($\rho_i \gg \rho_r$).

Lorsqu'une particule d'une énergie E assez grande ($E \gg 30$ eV) pénètre dans un réseau métallique, elle crée, le long de son trajet, des zones endommagées constituées par des défauts ponctuels plus ou moins associés. Par exemple, on peut obtenir [36] une zone lacunaire entourée d'une gaine d'interstitiels. Considérons alors, avec CORCIOVEI et BABCENCO [48], un métal irradié par des particules monocinétiques. Celles-ci heurtent des atomes qui, dans leur déplacement, peuvent en heurter d'autres par un processus de cascade. Si les cascades n'interagissent pas les unes sur les autres, c'est-à-dire que le flux intégré de particules est assez faible, l'augmentation de la résistivité résiduelle pour un métal bien isotrope est

$$\Delta\rho_r = c. \Delta\rho_c \quad (IV)$$

où c est le nombre de cascades par unité de volume $\Delta\rho_c$ la résistivité induite par une cascade.

ALFRED [49] a formulé les différentes équations permettant le calcul explicite de $\Delta\rho_c$. Elles tiennent compte des caractères électriques (dipôle, champ central, homopole) des défauts créés et de la distorsion du réseau autour de ces défauts.

Mais différents calculs simples ont montré que $\Delta\rho_c$ est approximativement égale à la somme des résistivités induites par les défauts ponctuels élémentaires que sont les lacunes et les interstitiels créés par irradiations. Les études faites par CARCIOVEI et BABCENCO [46] ont montré que cette hypothèse n'est pas rigoureuse.

Il est difficile de connaître exactement les résistivités des défauts élémentaires, bien que des règles empiriques aient été établies [45]. Pourtant, la connaissance des valeurs de $\Delta\rho_c$ pour différentes particules irradiantes permet, grâce à la simplification ci-dessus, la comparaison des effets d'irradiation : nous le verrons au § 5.3.1.1.

3.1.2 - Irradiations de l'uranium

Les irradiations de l'uranium aux neutrons thermiques (d'énergie $E \approx 0,02$ eV) ont été décrites par plusieurs auteurs [61] [27] [55] pour différentes températures. De leurs expériences, nous tirons trois principaux résultats.

Le premier est le gonflement de l'uranium pour les irradiations aux températures assez élevées. Les neutrons produisent la fission de l'uranium. Ce sont les fragments de fission qui détruisent partiellement le réseau cristallin et qui deviennent des atomes de gaz rares. Ces atomes diffusent et créent des bulles dans le métal, augmentant ainsi son volume [61].

Le deuxième résultat concerne la croissance. Il s'agit là d'une variation due à la présence de boucles de dislocations [60] [55] [16] [64].

Le troisième résultat concerne la résistivité électrique. Sous irradiation la résistivité électrique croît mais elle est limitée par une valeur de saturation vers laquelle elle tend lorsque le flux intégré augmente [26] [27] [55].

Ces trois effets sont négligeables pour nos expériences d'irradiation. En effet, une dose de $10^{13} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$ correspond à $2 \cdot 10^{15} \alpha \cdot \text{cm}^{-3}$ environ, soit une concentration atomique de l'ordre de $5 \cdot 10^{-16}$, ce qui est négligeable devant les autres impuretés de notre métal d'une concentration atomique totale de $2 \cdot 10^{-3}$.

D'autre part, les expériences sur la croissance de l'uranium à $4,5^\circ\text{K}$ [16] [16a]

montrent que pour une dose équivalente à $10^{13} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$, la variation de longueur est négligeable.

Enfin, la saturation de la résistivité, $(\Delta\rho)_{\text{sat}}$, à 4,2°K, pour différents types d'échantillons, est comprise entre ρ et 15ρ où ρ est la résistivité de l'uranium à la température de l'hélium liquide. Or l'augmentation maximale que nous avons obtenue ne correspond qu'à

$$\Delta\rho \neq 0,2 \cdot \rho. \quad (\text{V})$$

Dans ces conditions, nous pouvons admettre la proportionnalité entre $\Delta\rho$ et la concentration de défauts. La résistivité de l'uranium, au bout d'un temps t correspondant à une concentration c de cascades est

$$\rho(T, t) = \rho_i(T) + \rho_r + c \cdot \Delta\rho_c \quad (\text{VI})$$

Si les défauts créés sont stables quelle que soit T , c'est-à-dire si $\Delta\rho_c$ est constant, la relation (VI) peut s'écrire :

$$\rho(T, c) = \rho_o(T, o) + c \Delta\rho_c \quad (\text{VII})$$

où $\rho_o(T, o) = \rho_i(T) + \rho_r$ est la résistivité de l'échantillon au début de l'irradiation.

Nos résultats sont exprimés par la variation de la résistance électrique R en fonction du flux intégré Φ . On sait que

$$R = G \cdot \rho$$

G est un facteur numérique ne dépendant que de la forme de l'échantillon.

Ce facteur est supposé constant (ni croissance, ni gonflement).

Le nombre de cascades c est proportionnel au flux intégré Φ donc

$$\Phi = M c$$

La relation (VII) peut alors s'écrire :

$$R(T, \Phi) = R_o(T, o) + m\Phi \quad (\text{VIII})$$

où $m = \frac{G}{M} \Delta\rho_c$ est une constante si les défauts créés sont stables malgré les petites variations de la température T .

3.1.3 - Auto-irradiation aux particules α

Jusqu'à présent, les irradiations aux particules α utilisant un flux et une énergie des particules comparables aux nôtres, ont principalement concerné le plutonium et sa désintégration nucléaire.

WIGLEY [24] a étudié la variation de résistivité électrique du plutonium laissé dans l'hélium liquide pendant des milliers d'heures. Plus récemment ELIOTT, MINER et CLINARD [40] ont irradié, à 20°K, des alliages cérium-plutonium. Leurs points expérimentaux présentent une grande dispersion dont l'écart type est au mieux égal à $2 \cdot 10^{-2}$. Mais les courbes les plus probables montrent bien une augmentation de la résistivité au cours du temps.

3.2 - Dispersion des mesures

Dès le début de nos expériences, nous avons observé des dispersions dans nos mesures, même après remplacement de telle ou telle partie du circuit de mesure. Pour éliminer la variation de résistivité due à la variation de température du bain d'hélium liquide ($\frac{\Delta R}{R} = 1,2 \cdot 10^{-3} \Delta T$), nous avons utilisé des échantillons témoins non irradiés (voir § 2.1.2.).

Si un échantillon irradié a une résistance $R(T, \Phi)$ au bout d'une durée t_Φ correspondant à une dose Φ , l'échantillon témoin a, au même instant la résistance $R_E(T, t_\Phi)$. On a

$$R_E(T, t_\Phi) \cong R_E(T, 0) \quad (IX)$$

puisque cet échantillon n'est pas irradié. D'après la relation (VIII) du § précédent, nous avons :

$$\frac{R(T, \Phi) - R_E(T, t_\Phi)}{R_0} = \frac{m}{R_0} \Phi \quad (X)$$

si les résistances, au début de l'irradiation, sont égales, soit $R_E(T_0, 0) = R(T_0, 0) = R_0$. Il faut aussi que les échantillons comparés (irradié et témoin) soient exactement de même nature, ce qui est bien notre cas.

La relation (X) prévoit donc une variation linéaire de la résistance corrigée $R(T, \Phi) - R_E(T, t_\Phi)$ en fonction du flux intégré Φ malgré les variations de température.

Malgré cette correction, nous avons toujours une dispersion dans nos résultats. Nous essaierons de l'expliquer au § 5.1. Plus précisément, la résistance des échantillons irradiés ou non varie de $3 \cdot 10^{-3}$ (en valeur relative) en une journée. D'un jour à l'autre, la résistance d'un échantillon irradié croît puis diminue brusquement. D'une semaine à l'autre, on observe que les valeurs moyennes augmentent assez régulièrement. Les résultats que nous donnons concernent des valeurs moyennes journalières, donc correspondant à des variations de $\pm 3 \cdot 10^{-3}$.

3.3 - Uranium recuit en phase α

3.3.1 - Diminution de la résistivité aux très faibles doses

Deux échantillons d'uranium recuits en phase α ont été irradiés au même flux de $1,7 \cdot 10^5 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Nous avons observé pour ces deux expériences une diminution de la résistivité atteignant un maximum pour une dose de $2,5 \cdot 10^{11} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$ environ. Ce fait peut être rapproché des différentes irradiations de lames métalliques minces irradiées par des ions accélérés [50] [51]. L'explication de ce phénomène est encore controversée.

Les expériences de JOUSSET [22] [23] [25] [26] [27] concernant les irradiations aux électrons et aux neutrons montrent que pour l'uranium la courbe de variation de la résistivité en fonction du flux intégré présente une courbure positive à l'origine. Cela n'est pas en contradiction avec nos résultats, que nous avons portés sur la figure 14.

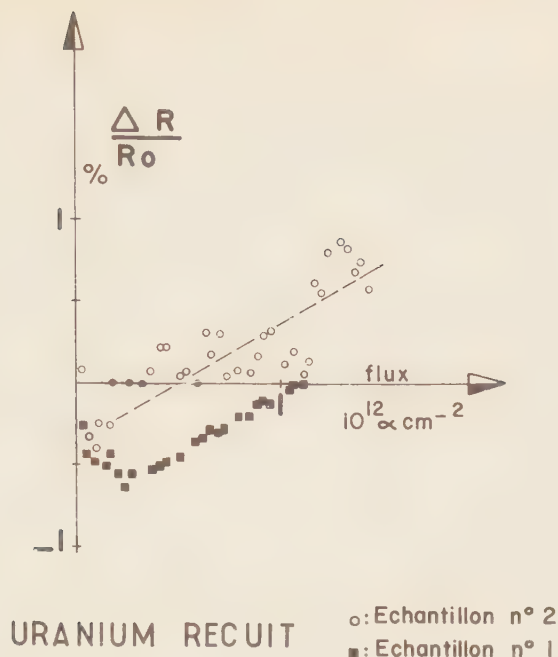


Figure 14

3.3.2 - Augmentation de la résistivité

L'une des irradiations d'uranium recuit en phase α a été arrêtée après une dose de $1 \cdot 10^{12} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$. Elle montre de façon précise que pour les flux intégrés supérieurs à $2,5 \cdot 10^{11} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$, la résistivité de l'uranium croît (figure 14).

La seconde irradiation d'uranium du même type montre une dispersion plus grande des résultats. Le circuit de mesure n'a pas été modifié, mais le nombre d'échantillons simultanément placés dans le cryostat a beaucoup augmenté. Cette seconde irradiation montre qu'on peut tracer, à travers le nuage de points expérimentaux, deux segments de droite parallèles à la courbe de la première irradiation (figure 15) et correspondant à une variation relative $\frac{\Delta R}{R} = 7,5 \cdot 10^{-15}$ par particule α par cm^2 .

La discontinuité dans cette courbe est analogue à celles que BAUER [53] a observées pour l'irradiation de l'or et du cadmium, à 8°K , avec des électrons (figure 16).

3.4 - Uranium brut de laminage

3.4.1 - Etude préalable

3.4.1.1 - Etude métallographique

Les échantillons d'uranium ont été laminés jusqu'à une épaisseur de 40μ . Avant chaque passe au laminage, ils ont été recuits pour diminuer leur fragilité. L'amincissement électrolytique consécutif à ce laminage ne modifie pas la texture de l'uranium : les échan-

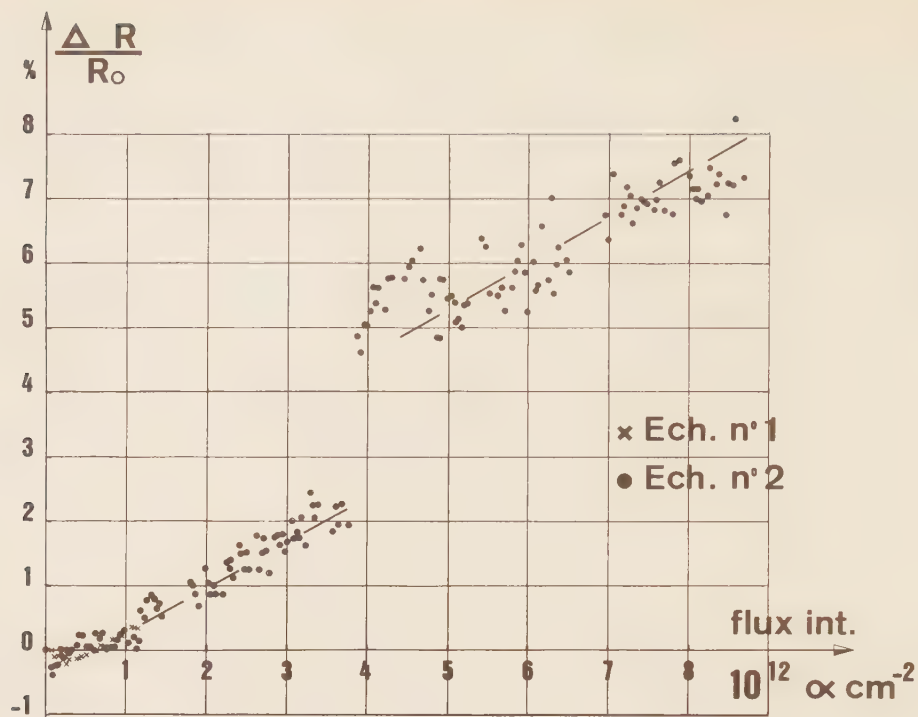


Figure 15

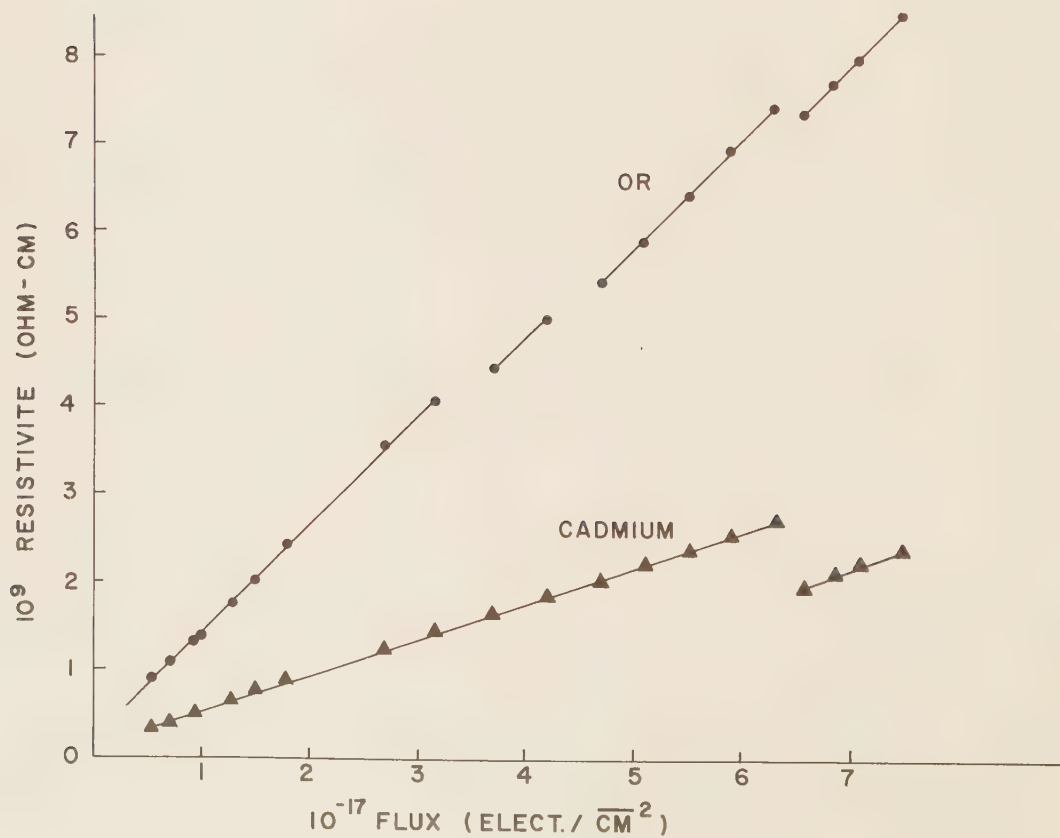


Figure 16



Figure 17

tillons sont partiellement recristallisés (figure 17) (*). Les dimensions des grains sont de l'ordre de 30 μ . Des observations au microscope électronique (**) montrent pourtant que l'uranium est assez écroui et fortement maclé (figure 18) ce qui montre, mieux que la mesure des densités de dislocations, que l'échantillon a été fortement déformé [54].

Ainsi nos échantillons bruts de laminage sont bien écrouis, mais ils ne sont pas comparables aux échantillons des autres expérimentateurs pour lesquels les grains ne sont pas visibles en micrographie.

3.4.1.2 - Comparaison avec l'uranium α

Pour vérifier la différence entre l'uranium α et celui brut de laminage, nous avons mesuré le rapport des résistances à température ordinaire et dans l'azote liquide. Les échantillons sont de même pureté chimique et une diminution de ce rapport ne peut venir

(*) Nous remercions M. R. GRIMOUILLE pour cette étude micrographique.

(**) Les observations ont été faites par M.J. LETEURTRE que nous remercions.

que d'une augmentation des imperfections physiques (joints de grains, macles et dislocations), ou d'une différence de texture.

Pour les échantillons recuits en phase α , ce rapport vaut :

$$\frac{R(300^\circ\text{K})}{R(78^\circ\text{K})} = 5,5$$

alors que pour les échantillons bruts de laminage, nous trouvons $\frac{R(300^\circ\text{K})}{R(78^\circ\text{K})} = 3,1$. Ces deux types d'échantillons sont donc nettement différenciés. La résistivité de l'uranium brut de laminage est de $1,9 \pm \mu\Omega$ cm à la température de l'hélium liquide.



Figure 18

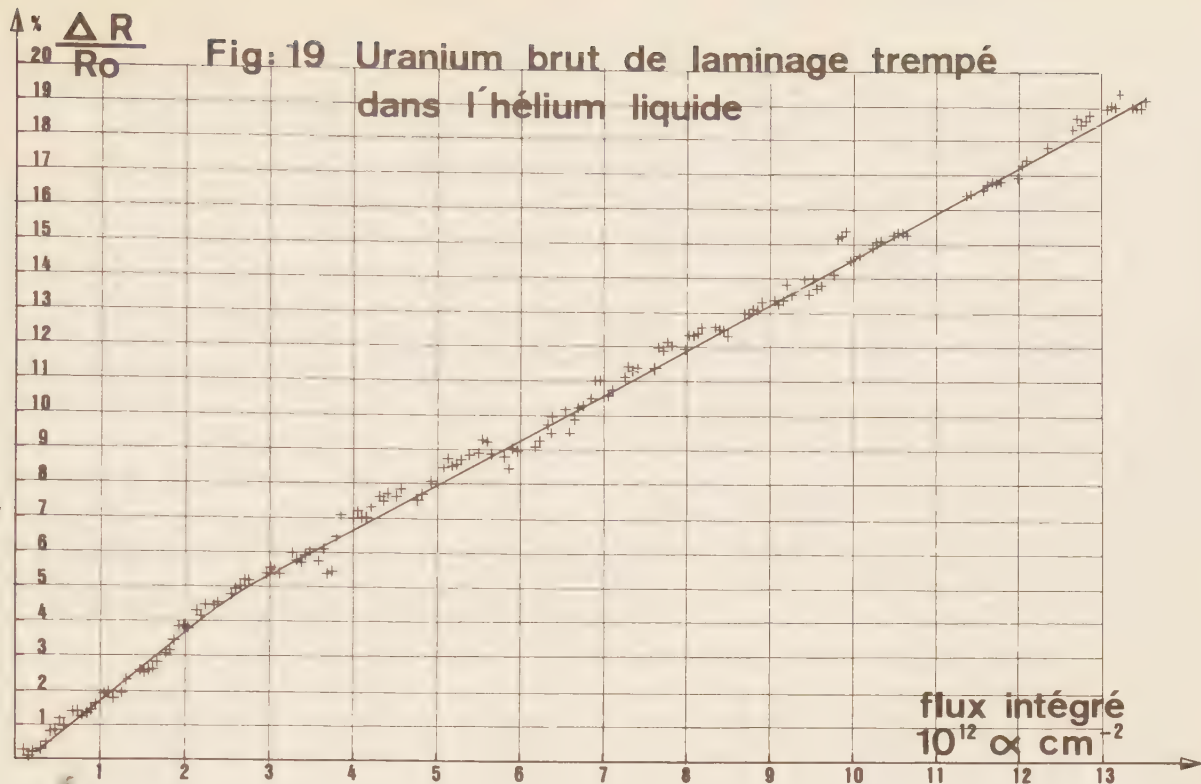


Figure 19

3.4.2 - Variation de la résistivité sous irradiation

3.4.2.1 - Echantillons trempés dans l'hélium liquide

Deux échantillons bruts de laminage ont été irradiés avec des flux de $5,7.10^5 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'un et $1,5.10^5 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'autre. Le premier a subi une très longue irradiation tandis que le second a subi différents recuits durant sa mise dans l'hélium liquide.

La figure 19 donne, pour l'échantillon longuement irradié, la courbe de variation de la résistivité en fonction du flux intégré. On observe que la diminution initiale de la résistivité est négligeable, sinon inexistante à la dispersion des mesures près. Le deuxième échantillon (flux de $1,5.10^5 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) donne une courbe identique. C'est lui qui fournit la valeur la plus précise de la pente de la courbe à l'origine car son flux plus faible donne des points expérimentaux plus nombreux. Nous trouvons que $\frac{\Delta R}{R}$ varie de $1,9.10^{-14}$ pour une particule α par centimètre carré. Sur la courbe relative au premier échantillon (flux de $5,7.10^5 \alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) on observe que la pente $\frac{\Delta R}{R_2}$ en fonction du flux Φ diminue et atteint $1,3.10^{-14}$ par particule α par cm^2 pour un flux intégré de l'ordre de $1.10^{13} \alpha \cdot \text{cm}^{-12}$.

3.4.2.2 - Influence des défauts de trempe

Au moins en début d'irradiation, où leurs concentrations sont du même ordre, les défauts de trempe influent sur les défauts créés par irradiation. Nous avons recuit un échantillon irradié par $1.10^{11} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$. L'augmentation de résistivité par irradiation était de

0,6 % (l'étude détaillée du recuit a été reportée au § 4.4.1.2.), mais nous avons observé un recuit de 2,2 % de la résistivité. Nous avons donc également recuit les défauts de trempe introduits lors de la mise de l'échantillon dans l'hélium liquide. Ce résultat est quantitativement en accord avec ceux de JOUSSET [19].

3.4.2.3 - Comparaison entre l'influence des défauts de trempe et celle des défauts d'irradiation

L'échantillon précédent a été recuit après une irradiation à une dose de $1,2 \cdot 10^{12} \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$ correspondant à une augmentation relative de 5 % environ pour la résistivité. Après un recuit (détaillé au § 4.4.2.) l'augmentation de résistivité est abaissée à 2,7 % environ (figure 20).

Immédiatement après le recuit la pente de la courbe $\frac{\Delta R}{R}$ est de $5 \cdot 10^{-14}$ pour une particule α par cm^2 . Cette vitesse d'endommagement est égale à celle obtenue juste après le recuit des défauts de trempe. L'augmentation moyenne de $\frac{\Delta R}{R}$, juste après ce recuit, est de $1 \cdot 10^{-14}$ par $(\alpha \cdot \text{cm}^{-2})$: la droite moyenne expérimentale de la figure 20 a cette pente.

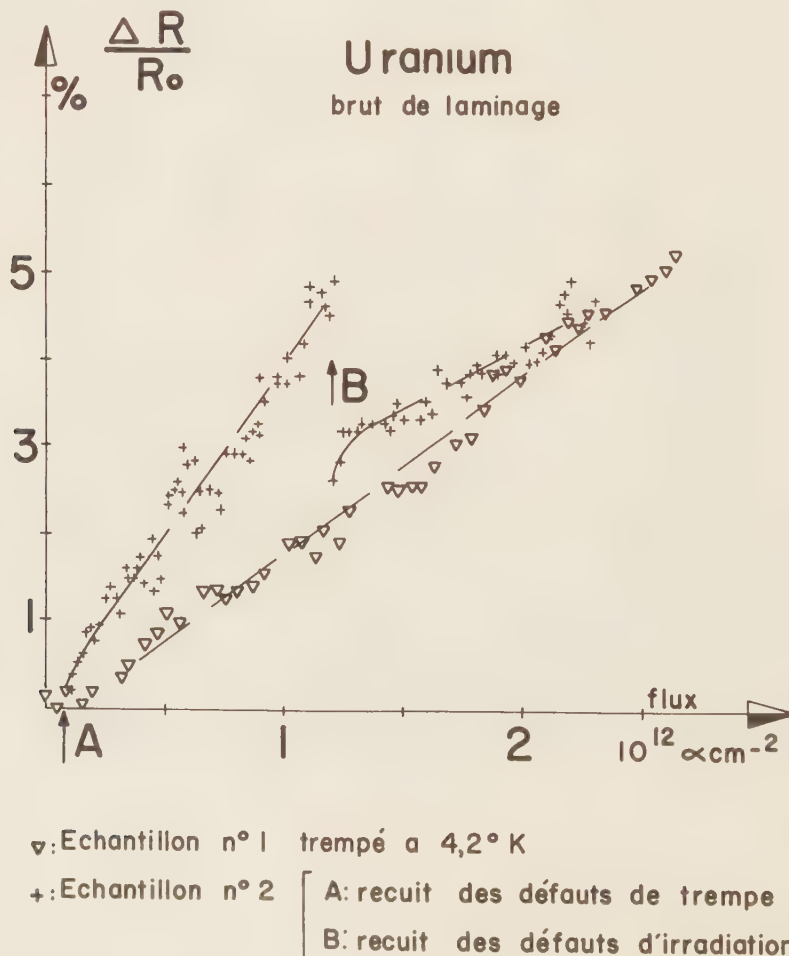


Figure 20

3.5 - Uranium préalablement irradié aux neutrons

3.5.1 - Irradiation préalable en pile

Les neutrons thermiques, d'énergie voisine de 0,02 eV, provoquent la fission du noyau de l'uranium. Nous avons placé deux échantillons d'uranium brut de laminage auprès du coeur d'un réacteur (*) afin que les fragments de fission créés par irradiation produisent des défauts ponctuels.

L'expérience se fait à température ordinaire, vers 50°C. Des fils en aluminium-cobalt (1 %) sont placés à côté des échantillons et la mesure de leur activité après sortie de pile permet de calculer la dose reçue par l'uranium. Nos échantillons ont reçu respectivement 6.10^{16} n.cm⁻² et $6,5.10^{17}$ n.cm⁻².

Des mesures de résistivité avant et après irradiation montrent qu'à la température de l'azote liquide, (77,8°K), on obtient des augmentations de 21 % et 24,7 % respectivement. L'augmentation observée n'est pas proportionnelle au flux intégré, car nous avons irradié à des flux pour lesquels la résistivité approche de sa valeur de saturation [55].

Les expériences de LETEURTRE [16] ont montré que pour toute irradiation de l'uranium à des doses dépassant 5.10^{15} n.cm⁻² le nombre d'amas de défauts ponctuels induits est pratiquement constant. Seule leur taille varie avec la dose. La saturation de la résistivité correspondrait à la saturation du nombre de défauts agglomérés en amas ou en boucles de dislocation.

Nos échantillons contiennent donc une très forte concentration de défauts ponctuels stables à température ordinaire (donc, à fortiori à basse température), c'est ce qui les distingue des échantillons précédents.

3.5.2 - Irradiation aux particules α

Le premier échantillon préalablement irradié par 6.10^{16} n.cm⁻² a été irradié aux particules α avec un flux de 3.10^6 α .cm⁻².s⁻¹, dans l'hélium liquide.

La droite moyenne expérimentale (figure 21) donne une variation relative de la résistance $\frac{\Delta R}{R} = 2,6.10^{-16}$ pour une particule α par cm².

Le second échantillon, irradié par $6,5.10^{17}$ neutrons par cm², a été irradié dans l'hélium liquide avec un flux de 1.10^6 α .cm⁻².s⁻¹. Nous pouvons tracer trois segments de droite à travers les points expérimentaux (figure 21), leur pente est égale à celle de la première courbe, soit pour $\frac{\Delta R}{R}$ une variation de $2,6.10^{-16}$ par α .cm⁻².

Les deux discontinuités sont analogues à celles déjà décrites pour l'uranium α (figure 15) ou pour l'or et le cadmium irradiés à 8°K aux électrons (figure 16). Ces discontinuités ne sont pas dues à quelque modification du montage car nous retrouvons la résistance initiale après recuit de l'échantillon. D'autre part, une droite passant à travers les points expérimentaux et ne tenant pas compte des discontinuités donnerait une variation relative de 1.10^{-15} par (α .cm⁻²) pour la résistance. Cela ne modifie pas les conclusions de la comparaison entre les différentes irradiations de divers types d'uranium.

(*) "Triton" : pile-piscine du Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-aux-ROSES.

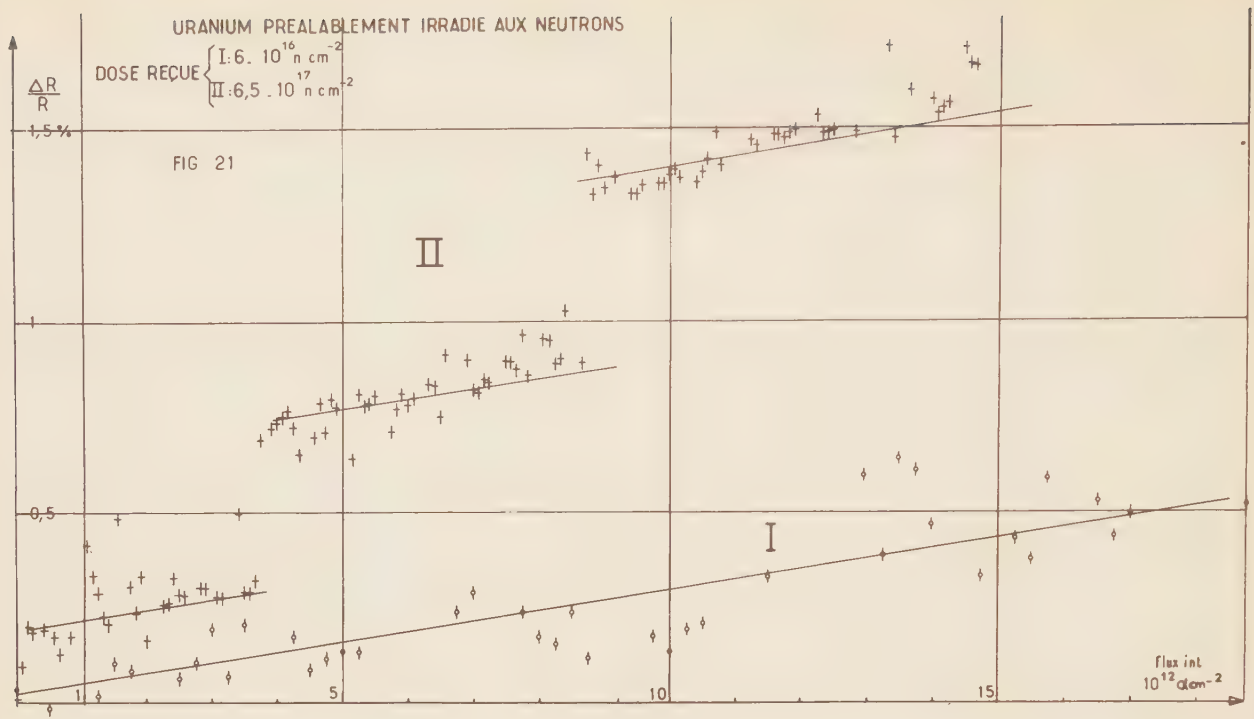


Figure 21

3.6 - Comparaison des irradiations aux particules α pour les divers types d'uranium

Le tableau V résume les valeurs de la pente initiale de la courbe $\frac{\Delta R}{R}$ en fonction de la dose Φ_α , ΔR étant la variation de résistance et R_0 la résistance initiale. Nous y avons également porté les augmentations de résistivité par unité de flux.

Il apparaît que la variation de résistance est la plus rapide après les recuits des défauts ponctuels et qu'elle est la plus lente après irradiation préalable aux neutrons.

Les variations de résistivité permettent de calculer le nombre de défauts produits par une particule α . Si une particule α crée n paires de Frenkel, pour un parcours moyen inférieur à l'épaisseur $\ell = 2 \cdot 10^{-3}$ cm de l'échantillon, une particule α par cm^2 crée n paires de Frenkel (soit $5 \cdot 10^{22} \cdot \ell$ atomes d'uranium). On obtient une concentration atomique $c = \frac{n}{1 \cdot 10^{18}} = n \cdot 10^{-18}$ paires de Frenkel par atome.

D'après la règle de BRAILSFORD [56], la variation de résistivité

$$(\Delta \rho)' = n \cdot 10^{-16} (\mu\Omega\text{cm/at}).$$

Nous pouvons ainsi calculer le nombre n de paires de Frenkel créées par chaque particule α dans les différents types d'uranium.

Pour l'uranium recuit en phase α ,

$$(\Delta \rho)' = 1,5 \cdot 10^{-14} = n \cdot 10^{-16}$$

d'où $n = 150$ paires de Frenkel.

Pour l'uranium écroui, des calculs identiques donnent $n = 900$ paires F dans l'échantillon trempé à 4,2°K, $n = 1900$ paires F et $n = 2000$ paires F respectivement dans

TABLEAU V

Comparaison des variations de résistivité par
irradiation pour divers types d'uranium

		Pente en début d'irradiation $\frac{d y}{d \Phi}$	
		$y = \frac{\Delta R}{R} (\alpha \cdot \text{cm}^{-2})^{-1}$	$y = \Delta \rho (\mu \Omega \text{ cm} / \alpha \cdot \text{cm}^{-2})$
traité en phase alpha		$7,5 \cdot 10^{-15}$	$1,5 \cdot 10^{-14}$
brut de laminage	trempe à 4,2°K	$1,9 \cdot 10^{-14}$	$9 \cdot 10^{-14}$
	après recuit des défauts de trempe	$4,9 \cdot 10^{-14}$	$1,9 \cdot 10^{-13}$
	après recuit des défauts d'irradiation	$5 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-13}$
	préalablement irradié aux neutrons	$2,6 \cdot 10^{-16}$	$1,6 \cdot 10^{-15}$

celui recuit des défauts de trempe et dans celui recuit des défauts d'irradiation. Enfin $n = 16$ paires de Frenkel dans l'uranium écroui préalablement irradié aux neutrons (*).

Ces résultats sont en accord avec ceux calculés d'après la théorie des collisions, aux § 5.3.1.2. et une étude plus détaillée est faite dans le § 5.3.1.

Rappelons que la précision de ces calculs est fortement affaiblie par l'incertitude sur la valeur des flux, les sources n'étant pas homogènes.

(*)

En adoptant la règle de LUCASSON et WALKER [45] plutôt que celle de BRAILSFORD, les nombres de paires de Frenkel trouvés seraient environ 3 fois plus élevés que ceux que nous avons donnés.

CHAPITRE IV

RECUIT DES DEFAUTS D'IRRADIATION

4.1 - Rappel de la théorie des recuits

4.1.1 - Méthodes de recuits

4.1.1.1 - Recuits isothermes

Les défauts produits par irradiation peuvent migrer à une température supérieure à 4,2°K. Ainsi, quand on maintient l'échantillon à une température $T_1 > 4,2^\circ\text{K}$, certains défauts peuvent disparaître ; la résistivité résiduelle induite diminue. Une telle expérience constitue un recuit isotherme. Le contrôle de l'effet du recuit se fait par mesure de résistivité à la température de référence $T_0 \approx 4,2^\circ\text{K}$. La figure 22-a schématise les opérations effectuées pour une température T_1 de recuit. Une expérience complète implique la variation de T_1 , ce qui donne plusieurs recuits isothermes.

4.1.1.2 - Recuits isochrones

Si on maintient l'échantillon pendant une même durée t à différentes températures $T_1, T_2 \dots$ supérieures à 4,2°K et qu'entre chaque passage d'une température à une autre on contrôle l'effet du traitement par mesure de résistivité, on effectue un recuit isochrone schématisé par la figure 22-b.

4.1.1.3 - Recuits combinés

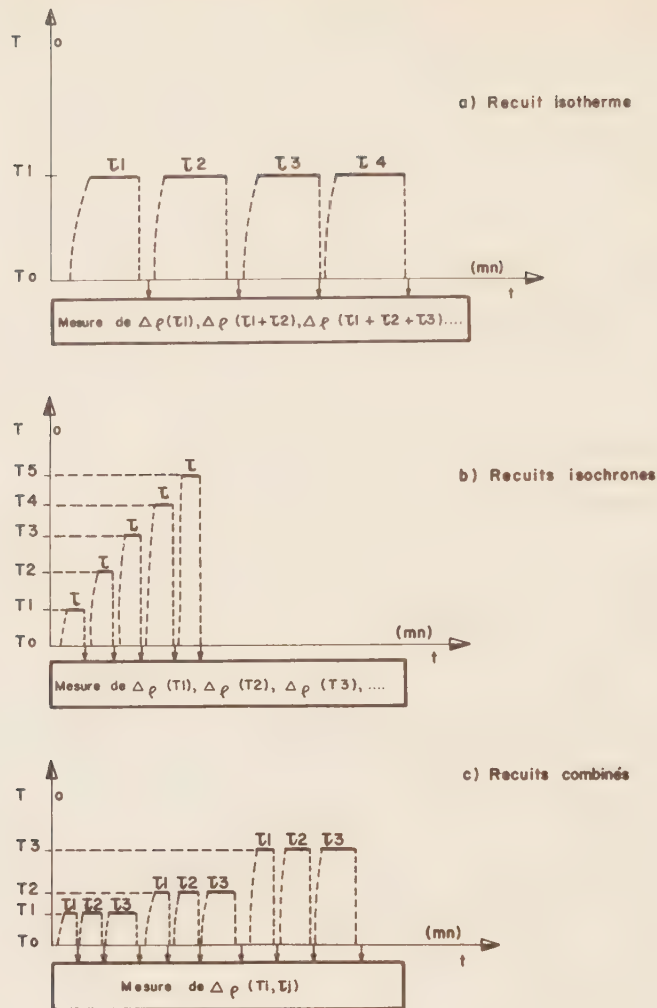
La durée importante de nos irradiations et la nécessité d'obtenir le plus de renseignements pour chaque irradiation conduit à l'utilisation de recuits combinés isothermes-isochrones. Il s'agit d'effectuer plusieurs isothermes en mesurant la résistivité de l'échantillon après les durées de recuit $t_1, t_2 \dots t_n$ qui sont toujours les mêmes pour les différentes températures.

Le schéma d'un recuit combiné est porté sur la figure 22-c.

4.1.2 - Interprétation des recuits

4.1.2.1 - Cinétique des recuit

Les courbes de recuits isothermes s'étudient habituellement dans l'approximation



SCHEMA DES DIFFERENTS TYPES DE RECUI TS

Figure 22

de l'existence d'un ordre de cinétique. On suppose que la résistivité résiduelle $\Delta \rho$ après un recuit d'une durée t à la température T , suit une loi du type

$$\frac{d(\Delta \rho)}{dt} = -f(E) \cdot (\Delta \rho)^n$$

où $f(E)$ est une fonction de l'énergie de migration du défaut mobile à la température T et n est appelé ordre du recuit.

PRIMAK [57] a étudié théoriquement le recuit de défauts dont l'énergie de migration varie au cours du recuit. Son étude utilise une cinétique du premier ordre, ce qui en diminue la portée.

DAMASK et DIENES [58] ont étudié les cinétiques de différents ordres en supposant que le processus n'est lié qu'à une seule énergie de migration à la fois. Nous utiliserons leurs résultats.

4.1.2.2 - Stades de recuits

Les courbes de recuits isochrones donnent la variation de la résistivité individuelle $\Delta\rho$ après des recuits d'une même durée à différentes températures T . La dérivée $-\frac{d(\Delta\rho)}{dT}$ en fonction de T varie et présente des pics de sommets T_s et de largeur $(\Delta T)_s$.

Un domaine de température $[T_s - \frac{1}{2} (\Delta T)_s ; T_s + \frac{1}{2} (\Delta T)_s]$ est appelé stade de recuit. Il est évident que les défauts de même nature dans un même métal présentent les mêmes stades de recuits.

Nous utiliserons ce fait pour comparer les défauts de trempe et ceux d'irradiation.

4.1.2.3 - Energie de migration

Les défauts réticulaires migrent s'ils ont une énergie supérieure à un seuil appelé énergie de migration. Parmi les différentes méthodes de détermination de celle-ci nous emploierons celle qui utilise les courbes de recuits combinés isothermes-isochrones.

Si la variation de la résistivité résiduelle $\Delta\rho$ suit une loi telle que

$$\frac{d(\Delta\rho)}{dt} = - f(E) \cdot F(\Delta\rho)$$

et que

$$f(E) = K_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

où t est le temps, T la température, E l'énergie de migration, k la constante de Boltzmann et K_0 une constante arbitraire, on admet que $\Delta\rho$ est proportionnel à la concentration en défauts qui migrent. Au point de jonction entre les courbes de recuit aux températures T_1 et T_2 on a $\Delta\rho = r$ et

$$\left[\frac{d(\Delta\rho)}{dt}\right]_{T_1} = m_1 = - F(r) K_0 \exp\left(-\frac{E}{kT_1}\right)$$

$$\left[\frac{d(\Delta\rho)}{dt}\right]_{T_2} = m_2 = - F(r) K_0 \exp\left(-\frac{E}{kT_2}\right)$$

d'où

$$\text{Log } \frac{m_1}{m_2} = -\frac{E}{k} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)$$

et

$$E = -k \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \text{Log } \frac{m_1}{m_2}$$

L'incertitude sur E dépend alors principalement de celle des mesures des températures et des pentes m_1 et m_2 . Les températures T_1 et T_2 doivent se situer dans le même stade de recuit pour que l'énergie de migration soit effectivement la même. Nous comparerons, pour chaque stade, les énergies de migration des défauts de trempe et celles des défauts d'irradiation.

4.2 - Précisions obtenues sur les mesures de recuits

4.2.1 - Températures

Ainsi qu'il a été dit dans les § 2.4.2. et 2.4.3., la température de recuit s'obtient par mesure de la tension aux bornes d'un thermocouple (or-fer/chromel ou argent-or) ou par celle de la résistance de l'échantillon en position de recuit.

Nous avons établi une courbe résistance-température pour l'uranium et nous trouvons qu'elle coïncide avec celle publiée par JOUSSET [19].

Pour les températures inférieures à 25°K, il n'est guère nécessaire de réchauffer l'échantillon à l'aide du four de recuit. Cela justifie la position du thermocouple qui est collé à quelques millimètres de l'échantillon et fournit alors la vraie température de celui-ci avec une erreur de l'ordre de $\pm 0,2^\circ\text{K}$. L'écart de température est plus grand lorsqu'on chauffe le four de recuit. Mais, pour les températures correspondantes, l'effet de trempe s'ajoute alors, généralement, à celui du recuit. Nous avons effectué assez peu de recuits à ces températures et sur les courbes que nous donnons, nous avons placé les barres d'erreur (ΔT allant jusqu'à $\pm 10^\circ\text{K}$ pour ces cas).

Enfin, en l'absence de thermocouple, les recuits isothermes n'ont pas été possibles car la durée de recuit aurait été trop faible devant celle de la mise en température et du contrôle de celle-ci par mesure de résistance.

4.2.2 - Résistances électriques

Les précisions sur les mesures de résistances ont été données dans le § 2.4.2.

L'erreur sur les résistances électriques dans l'hélium liquide est de l'ordre de 10^{-3} en valeur relative ; elle est faible devant la diminution des résistances dues aux recuits.

4.3 - Recuit de l'uranium traité en phase α

L'échantillon d'uranium traité en phase α n'était pas muni d'un thermocouple. Nous n'avons alors effectué que des recuits isochrones. La température était donnée par la résistance de l'échantillon à la température de recuit et par la courbe résistance-température préalablement établie.

Les résultats du recuit des défauts d'irradiation sont portés sur la figure 23. Une rupture d'un fil de mesure de différence de potentiel nous a empêché de recuire l'échantillon à des températures supérieures à 19°K. Toutefois, il apparaît que le recuit commence dès 7°K.

D'autre part, la courbe indique l'existence de deux sous-stades de recuit ; l'un en-deçà de 10°K et l'autre entre 13 et 19°K.

Rappelons qu'avec un seul recuit isochrone, il n'est pas possible de calculer l'énergie de migration des défauts, ce qui est le cas ici.

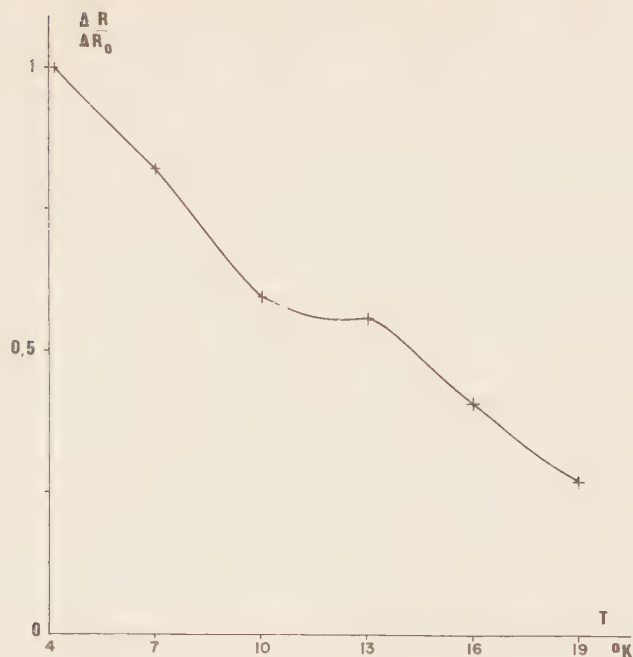


Figure 23

4.4 - Recuit de l'uranium brut de laminage

4.4.1 - Echantillon trempé dans l'hélium liquide

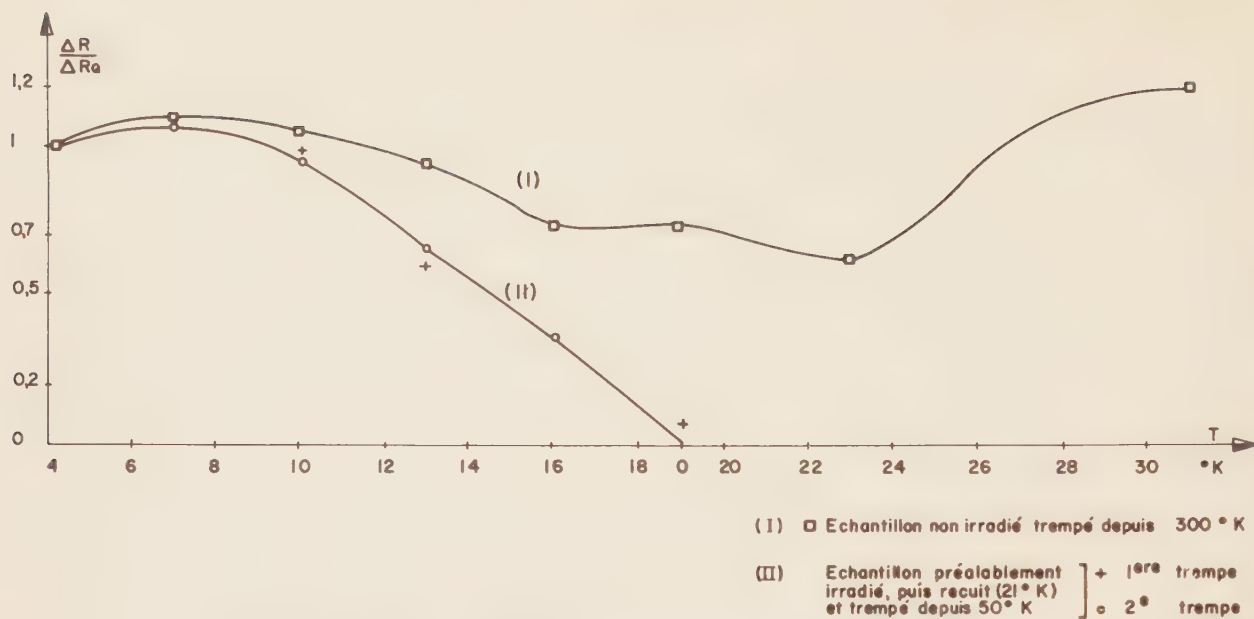
4.4.1.1 - Echantillons sans défauts d'irradiation

Les échantillons d'uranium brut de laminage ne sont que partiellement écrouis ; il est donc nécessaire d'étudier leur comportement après trempe dans l'hélium liquide, puisque les courbes publiées par JOUSSET [19] ne font pas mention de ce type de métal.

Les résultats d'un recuit isochrone d'échantillon non irradié et trempé depuis la température ordinaire sont portés sur la courbe (I) de la figure 24. Il apparaît que le sous-stade compris entre 4 et 7°K se traduit par une augmentation de la résistivité. Le minimum de résistivité se situe à 23°K et l'effet de trempe commence vers 25 ou 30°K. Ces résultats montrent, compte tenu de la pureté de l'uranium, que les échantillons donnent des courbes en accord avec celles déjà publiées [4] [19].

Nous avons aussi recuit de façon isochrone un échantillon d'uranium brut de laminage préalablement irradié aux particules α dans l'hélium liquide. Cet échantillon a été recuit des défauts d'irradiation (figure 25) puis trempé depuis 50°K. Il contient donc, en plus des défauts de trempe, des lacunes produites par l'irradiation et laissées par le recuit partiel (jusqu'à 21°K).

Les résultats du recuit isochrone de cet échantillon sont portés sur la courbe (II) de la figure 24. Il apparaît que le premier sous-stade (4 ; 7°K) se traduit par une augmentation de résistivité et que les défauts de trempe sont entièrement recuits à 19°K.



Recuits isochrones (10 min.) de l'uranium
brut de laminage

Figure 24

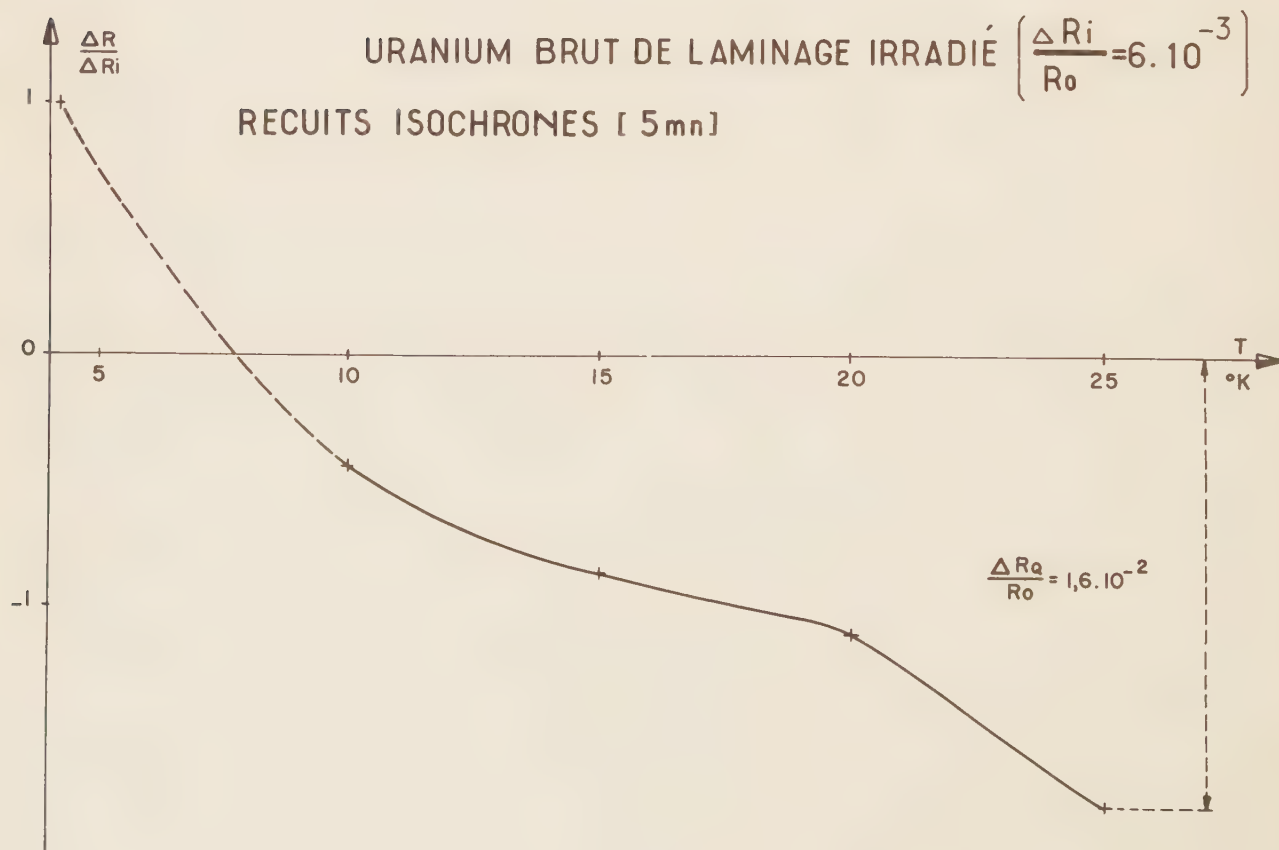


Figure 25

4.4.1.2 - Echantillons irradiés

Deux échantillons bruts de laminage, trempés dans l'hélium liquide ont été recuits après irradiation à des doses telles que la variation relative de la résistivité a été de $\frac{\Delta R}{R_0} = 0,006$ et $\frac{\Delta R}{R_0} = 0,19$ respectivement.

Les résultats de la première expérience sont portés sur la figure 25 et ceux de la seconde sur la figure 26.

Le premier recuit s'est fait de façon isochrone (5 minutes). Il apparaît qu'à 10°K, les défauts d'irradiation sont entièrement recuits et qu'une stabilisation de la résistivité a lieu à 25°K. En effet, deux recuits de 5 minutes à 25°K donnent la même valeur de la résistivité. Celle-ci est telle que la résistivité résiduelle relative recuite correspond à 0,02, alors que 0,006 seulement correspond à l'irradiation. Nous avons donc recuit les défauts de trempe.

D'autre part, nous avons effectué des recuits isochrones (9 minutes) sur le deuxième échantillon, lequel était muni d'un échantillon témoin. Il apparaît nettement (figure 26) trois sous-stades situés dans les domaines suivants : $[4 ; 7^\circ\text{K}]$, $[10 ; 13,5 \pm 0,5^\circ\text{K}]$ et $[16 ; 24^\circ\text{K}]$. Pour les températures comprises entre 25 et 50°K, la valeur de la résistivité oscille largement, cela est dû à la non-reproductibilité de la vitesse de plongée dans l'hélium liquide. Enfin, tous les défauts créés par irradiation sont recuits à 85°K et il n'apparaît pas d'effet de trempe dans le recuit de l'échantillon irradié pour les températures supérieures à 50°K.

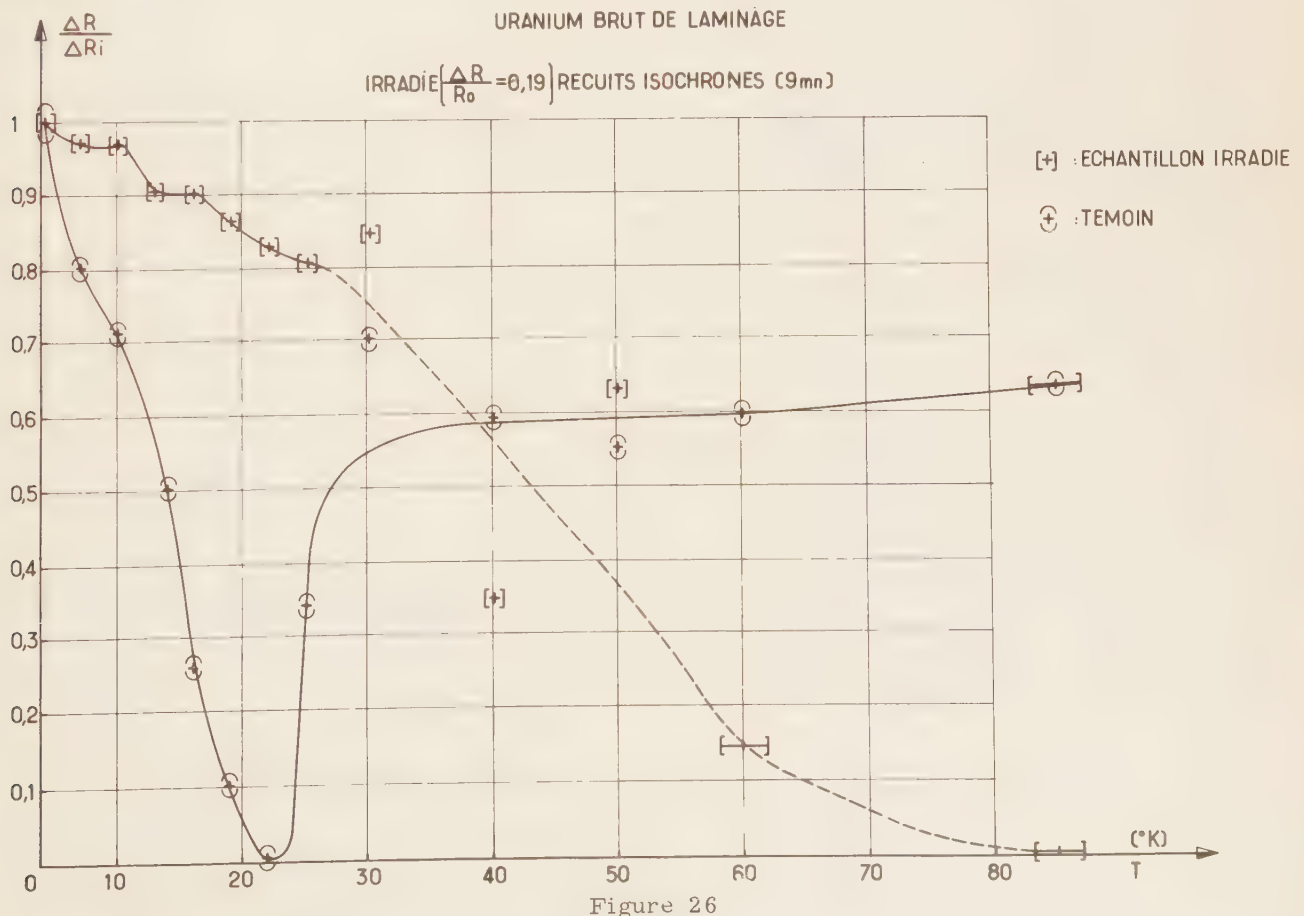


Figure 26

4.4.2 - Echantillon sans défaut de trempe

L'échantillon d'uranium brut de laminage et recuit des défauts de trempe a été recuit de façon combinée isotherme-isochrone jusqu'à 21°K. Les mesures expérimentales sont portées sur la figure 27. Sur les courbes ainsi tracées, il est possible de déterminer les énergies de migration des défauts recuits. Nous trouvons qu'elles valent, à 6, 12 et 16°K, respectivement $0,006 \pm 0,003$, $0,023 \pm 0,008$ et $0,043 \pm 0,01$ eV.

La courbe isochrone tirée de ce recuit combiné est portée sur la figure 28, il apparaît trois sous-stades de recuit situés à $[4 ; 7^\circ\text{K}]$, $[10 ; 13,5 \pm 0,5^\circ\text{K}]$ et $[14 ; 20^\circ\text{K}]$. Le premier sous-stade est beaucoup plus marqué que les deux autres, le troisième est très peu marqué.

Après ces recuits, la résistivité résiduelle correspond à 65 % de la résistivité induite par irradiation.

4.5 - Recuits de l'uranium préalablement irradié aux neutrons

Les échantillons d'uranium notés (I) et (II) préalablement irradiés aux neutrons aux doses de $6,5 \cdot 10^{17}$ n.cm⁻² et $6 \cdot 10^{16}$ n.cm⁻² ont été irradiés, dans l'hélium liquide, par des particules α jusqu'à des doses donnant respectivement $\frac{\Delta R}{R_0} = 0,5$ % en variation relative de résistance (ou de résistivité). Les recuits de ces échantillons se sont faits de façon combinée isotherme - isochrone (Tableau VI).

Les mesures de résistivité sont reportées sur la figure 29 où la courbe (I) correspond à l'échantillon (I) et la courbe (II) à l'échantillon (II). La courbe (II) nous permet de calculer les énergies de migration à 14,5°K et 20,5°K, nous trouvons respectivement $0,014 \pm 0,007$ et $0,039 \pm 0,01$ eV. En outre, nous remarquons pour la courbe (I) une légère augmentation de la résistivité à 10°K, alors qu'à la même température la courbe (II) présente un pseudo-palier.

Sur la figure 30, nous avons porté les courbes isochrones correspondant aux recuits combinés. Nous observons que l'échantillon le plus fortement irradié (tant aux particules α qu'aux neutrons) donne les valeurs de résistivité les plus fortes pour des recuits identiques. La courbe (I) est "au-dessus" de (II). Le résultat est analogue à divers résultats expérimentaux obtenus lors des recuits de l'uranium irradié aux neutrons $[25]$ $[26]$ $[27]$.

Les recuits montrent deux sous-stades à $[4 ; 7^\circ\text{K}]$ et $[10 ; 23^\circ\text{K}]$. Les valeurs de l'énergie de migration à 14,5°K et 20,5°K montrent que ce second sous-stade se divise en deux.

Enfin nous observons que l'écart entre le minimum de résistivité (vers 23°K) et le "palier" dû à l'effet de trempe (vers 45°K) correspond à une augmentation relative de 2 % en résistivité. Cela montrerait que le recuit des défauts d'irradiation est total puisque cette valeur est du même ordre que celle obtenue par trempe.

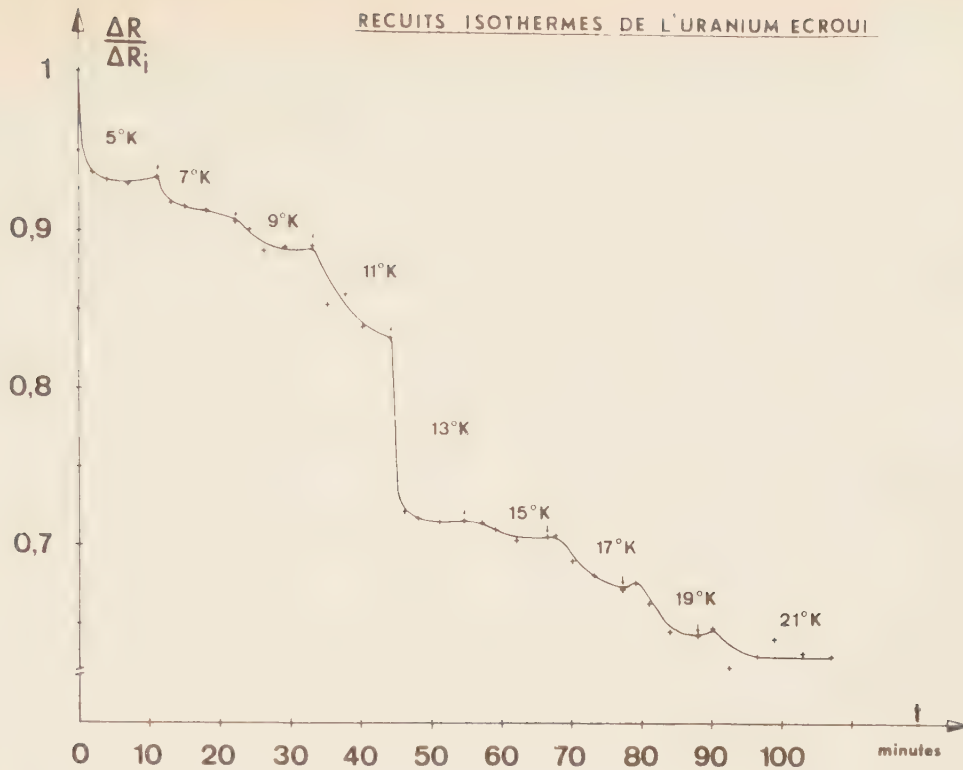


Figure 27

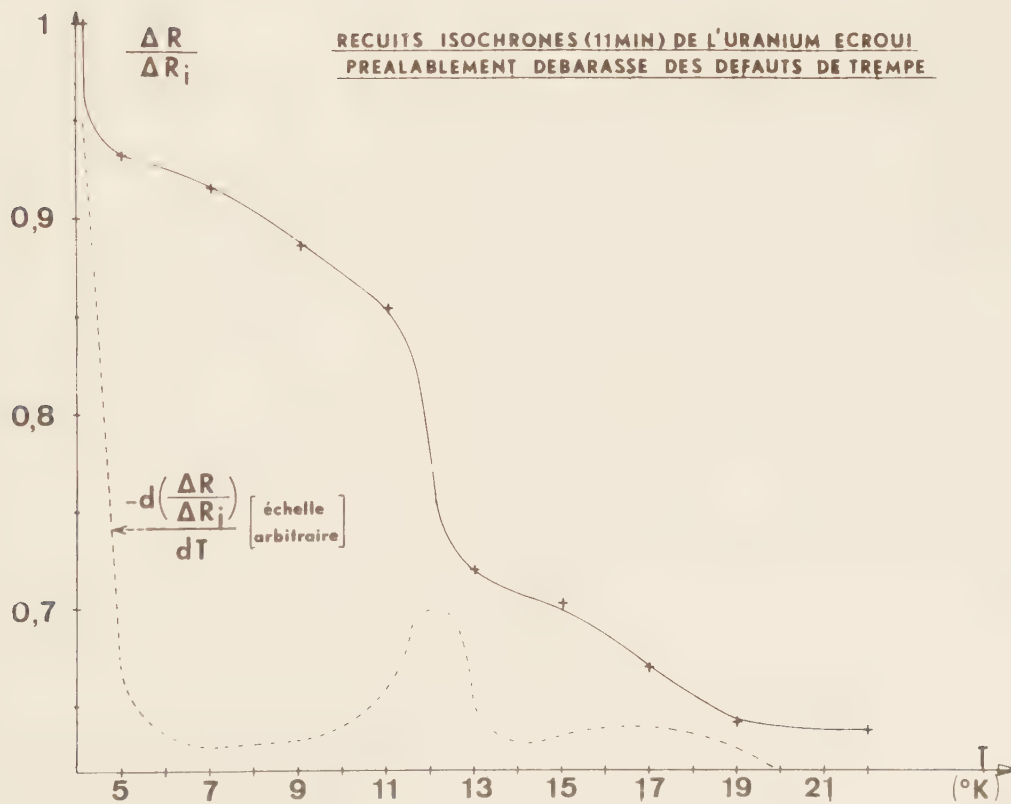


Figure 28

TABLEAU VI

Echantillons	I	II
Irradiation aux neutrons Φ_n	$6,5 \cdot 10^{17} \text{ n.cm}^{-2}$	$6 \cdot 10^{16} \text{ n.cm}^{-2}$
$(\frac{\Delta R}{R})_{\text{neutron}}$	0,247	0,21
$(\frac{\Delta R}{R})_{\text{irr } \alpha}$	0,015	0,05

4.6 - Comparaison des différents recuits

4.6.1 - Comparaison des stades de recuit

A partir des six courbes isochrones, nous pouvons définir trois domaines de températures contenant chacun un sous-stade de recuit. De par l'usage, le stade I de recuit des défauts ponctuels concerne les températures inférieures à 100°K, aussi nous avons appelé nos domaines de température des "sous-stades". Il s'agit des intervalles suivants [4 ; 10°K], [10 ; 14°K], [14 ; 24°K]. Nous confondons ces domaines aux sous-stades et nous les noterons I_A , I_B et I_C respectivement.

L'uranium recuit en phase α ne présente pas d'une façon nette le sous-stade I_C , car le recuit a été arrêté un peu trop tôt.

Les échantillons d'uranium préalablement irradiés aux neutrons sont tels que les sous-stades I_B et I_C sont contigus, sans "palier" de séparation. Mais nous avons vu que les mesures d'énergie d'activation permettent pourtant de les distinguer.

Les quantités de défauts correspondant à chaque sous-stade ne sont pas reproductibles. Elles dépendent de l'état physique (écroui, recuit, préalablement irradié) de l'échantillon et de la dose de particules α reçue. Il semble cependant qu'au sous-stade I_B correspondent plus de défauts qu'à I_A ou I_C .

Enfin, pour l'échantillon brut de laminage, trempé dans l'hélium liquide et irradié à une dose telle que la variation de résistivité est la plus forte ($\frac{\Delta R}{R_0} = 0,19$), il existe un stade I_D dans le domaine [24 ; 90°K]. Celui-ci est nettement plus important, dans ce cas, que les trois autres sous-stades I_A , I_B , I_C . Mais pour les autres échantillons d'uranium, ce sous-stade I_D est masqué par l'effet de trempe, qui apparaît, rappelons-le, au-dessus de 20°K.

4.6.2 - Comparaison des énergies de migration

Il n'a pas été possible de mesurer les énergies de migration pour chaque échantillon. Nous avons des résultats de recuits pour deux échantillons l'un préalablement irradié

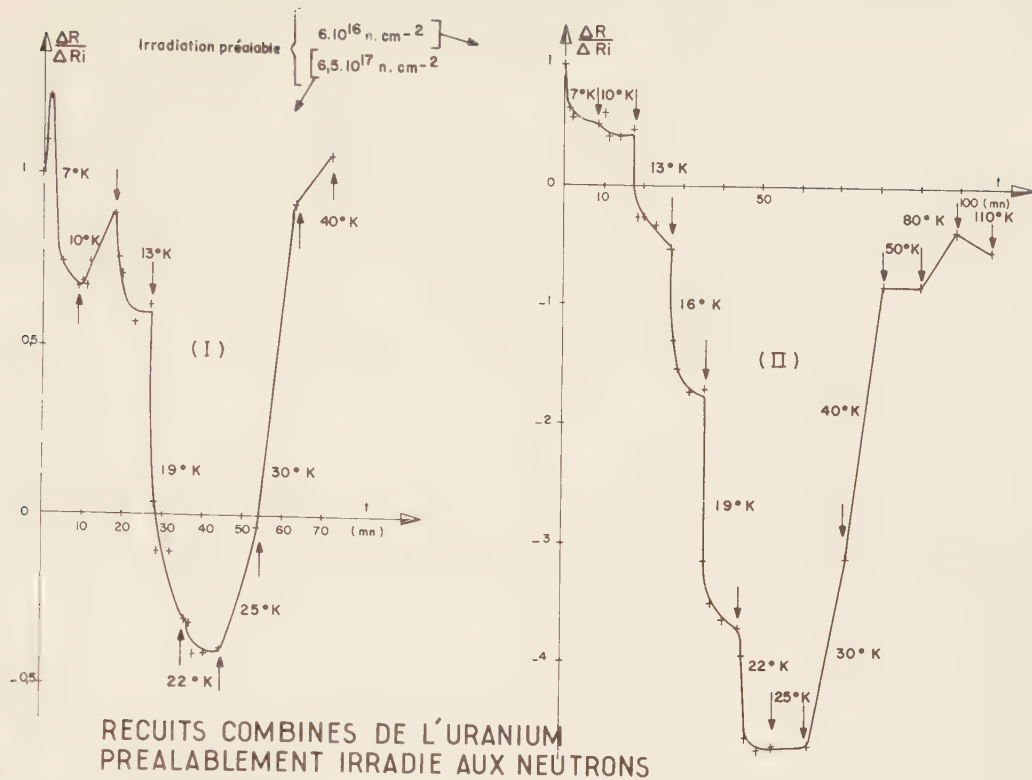


Figure 29

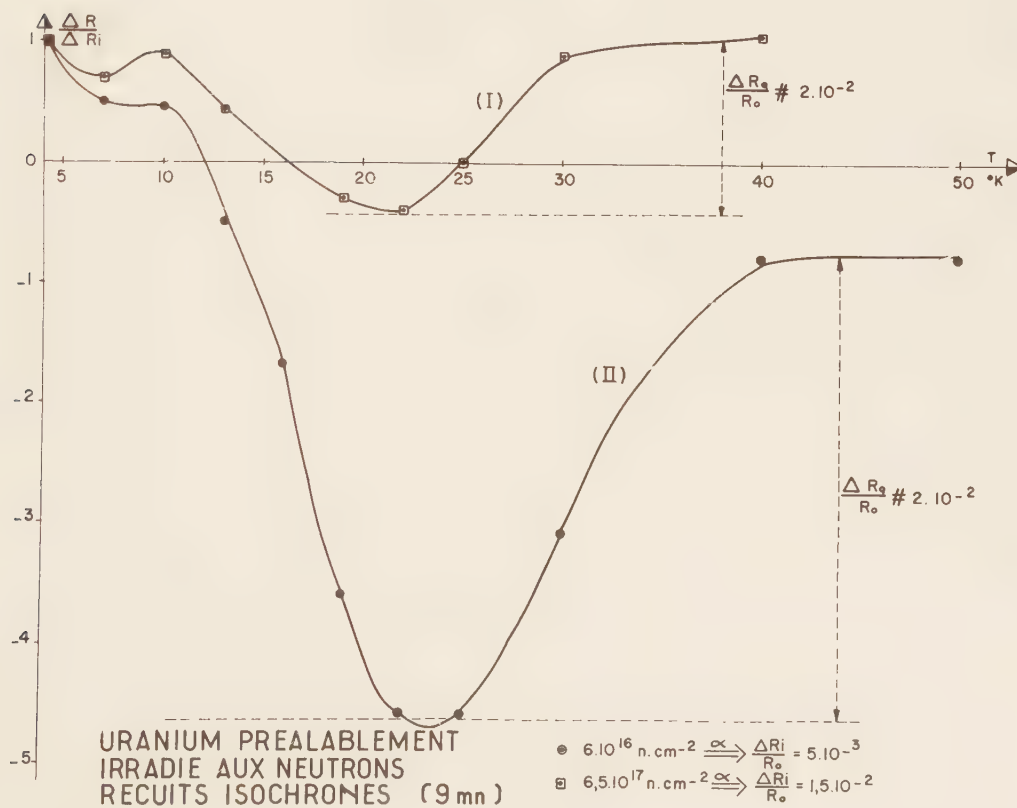


Figure 30

aux neutrons ($6.10^{16} \text{ n.cm}^{-2}$) l'autre, également brut de laminage, recuit des défauts de trempe.

Pour le premier échantillon la première température de recuit (7°K) est telle qu'il n'est pas possible de calculer l'énergie de migration dans le sous-stade I_A . Celle-ci vaut, rappelons-le, $E_A = 0,006 \pm 0,003 \text{ eV}$ pour le deuxième échantillon.

Pour le sous-stade I_B , nous trouvons $0,014 \pm 0,008 \text{ eV}$ pour le premier et $0,023 \pm 0,008 \text{ eV}$ pour le deuxième. Nous pouvons donc associer à ce sous-stade l'énergie $E_B = 0,019 \pm 0,012 \text{ eV}$.

Le sous-stade I_C donne $0,039 \pm 0,01 \text{ eV}$ pour le premier et $0,043 \pm 0,01 \text{ eV}$ pour le deuxième échantillon. Nous pouvons donc lui associer l'énergie de migration $E_C = 0,04 \pm 0,012 \text{ eV}$.

Rappelons qu'il n'a pas été possible de mesurer l'énergie associée au sous-stade I_D .

Enfin, les trois énergies E_A , E_B et E_C données avec des incertitudes assez grandes, sont cependant significativement distinctes.

CHAPITRE V

INTERPRETATION DES RESULTATS

5.1 - Interprétation des courbes de variation de résistivité sous irradiation

5.1.1 - Interprétation de la dispersion des mesures

Les expériences de recuit montrent que dès 5°K les défauts d'irradiation migrent. La température d'irradiation (4,2°K) n'est donc pas assez basse pour geler entièrement les défauts créés : le flux de particules α est faible et on peut craindre que des élévations accidentelles de températures soient telles que le nombre de défauts ainsi recuits soit comparable à celui des défauts créés.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons mesuré la résistance de deux échantillons d'uranium pendant un remplissage en hélium liquide. L'un des échantillons sert de témoin et l'autre est un échantillon d'uranium traité en phase α dont l'augmentation de résistivité induite par irradiation est de l'ordre de 2 %. Durant le remplissage, la pression s'est élevée jusqu'à 900 g/cm² (T = 5°K). La figure 31 montre les variations de résistance en fonction du temps. Il apparaît que la résistance de l'échantillon irradié diminue de près de 6 % de sa valeur initiale qu'elle retrouve environ cinq heures après le début du remplissage. En fait, l'élévation de la température était moins forte (jusqu'à T = 4,7°K environ) lors des autres remplissages. Mais cette expérience montre nettement que les variations de pression de l'hélium influent largement sur la résistance de l'uranium irradié.

Ainsi, la dispersion des mesures de résistance est due à des variations de pression de l'hélium. Celles-ci peuvent être causées par les variations de vitesse de pompage du gaz récupéré.

5.1.2 - Interprétation de la diminution initiale de résistivité pour l'uranium α

Les défauts ponctuels créés par trempe dans l'uranium (voir § 1.2) peuvent être recuits par ceux produits par les particules α . Le calcul que nous allons effectuer montre que, pour un flux instantané faible, la variation de résistivité peut être une diminution pour les faibles doses.

En première approximation, la résistivité induite par irradiation peut s'écrire :

$$\Delta \rho = i \rho_i + \ell \rho_\ell \quad (I)$$

$$\text{et} \quad \frac{d(\Delta \rho)}{dt} = \rho_i \frac{di}{dt} + \rho_\ell \frac{d\ell}{dt} \quad (II)$$

VARIATION DE LA RESISTANCE DE
L'URANIUM ALPHA AU COURS D'UN
REPLISSAGE EN HELIUM LIQUIDE

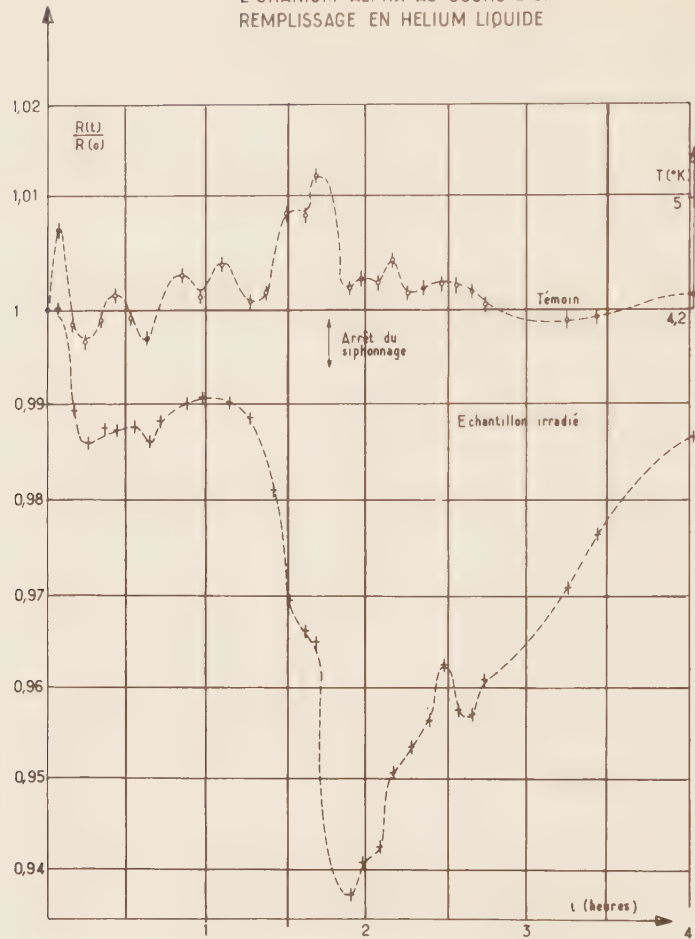


Figure 31

où t est le temps, i la concentration en interstitiels, l celle en lacunes, ρ_i et ρ_l les résistivités induites par un interstitiel ou une lacune.

D'après LETEURTRE [16] les interstitiels d'irradiation s'annihilent avec les lacunes créées par trempe en même temps que les interstitiels dissociés. Cela est analogue à l'hypothèse de BUDIN et LUCASSON sur l'irradiation d'aluminium trempé [47].

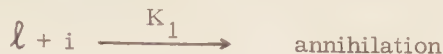
Nous pensons que les interstitiels de trempe sont recuits par les lacunes d'irradiation et migrent dès 4,2°K vers des puits. Nous adoptons cette hypothèse, en remarquant que l'expression de la variation de résistivité $\Delta\rho$ est symétrique par rapport aux concentrations i et l en interstitiels et lacunes. Nous avons alors

$$\frac{dl}{dt} = K_0 - K_1 l_i \quad (\text{III})$$

$$\frac{di}{dt} = K_0 - K_1 l_i - K_2 i \quad (\text{IV})$$

où K_0 est le nombre de paires de Frenkel produites par irradiation durant l'unité de temps.

K_1 est la constante de vitesse de la réaction



K_2 celle de $i \xrightarrow{K_2} \text{puits}$

La relation (II) peut alors s'écrire :

$$\frac{d(\Delta \rho)}{dt} = (\rho_i + \rho_l) (K_0 - K_1 l i) - \rho_i K_2 i \quad (V)$$

L'intégration de cette équation peut se faire de façon approchée. Les différents paramètres peuvent être évalués en supposant applicable la statistique de BOLTZMANN. On a $K_2 = \alpha \lambda^2 \exp(-\frac{B_i}{kT})$ et $K_1 = g \nu \exp(-\frac{E_i}{kT})$ où g est un facteur dépendant de la maille cristalline et valant par exemple 30 pour les métaux cubiques à faces centrées. ν est la fréquence de vibration du réseau cristallin, T la température, E_i l'énergie de migration des interstitiels, α la concentration en puits et λ la distance de sauts.

K_0 dépend de l'énergie et du flux de particules d'irradiation et les résistivités induites ρ_i et ρ_l peuvent se calculer [52].

Au début de l'irradiation $l = 0$ et $i = i_{\text{trempe}}$ et l'équation (V) donne

$$\frac{d(\Delta \rho)}{dt} = K_0 (\rho_i + \rho_l) - K_2 \rho_i i_{\text{trempe}} \quad (VI)$$

Pour un flux instantané très faible, nous pouvons avoir (*)

$$K_0 < \frac{K_2 \rho_i i_{\text{trempe}}}{\rho_i + \rho_l} \quad (VII)$$

ce qui donne $\frac{d(\Delta \rho)}{dt} < 0$. La résistivité de l'uranium commence par une diminution, sous irradiation.

5.1.3 - Interprétation des changements de pente après recuits des défauts

Dans ce paragraphe, nous appellerons les différentes concentrations initiales en lacunes de la manière suivante :

l_{irr} , l_r et l_{neutron} respectivement pour les irradiations après recuit des défauts de trempe, après celui des défauts d'irradiation et après irradiation aux neutrons.

Le recuit des défauts de trempe dans un échantillon irradié a été détaillé au

§ 3.4.2.2. Les conditions initiales pour une irradiation postérieure à ce recuit sont donc $i = 0$, $l = l_{\text{irr}}$. La vitesse initiale d'augmentation de résistivité est donc :

$$\frac{d(\Delta \rho)}{dt} = K_0 (\rho_i + \rho_l) \quad (VIII)$$

En comparant les relations (VI) et (VIII) on voit que la résistivité augmente plus vite après recuit des défauts de trempe. C'est ce que nous observons effectivement.

Le recuit des défauts d'irradiations (§ 3.4.2.3.) donne comme conditions initiales pour une irradiation ultérieure, $i = 0$, $l = l_r$ concentration résiduelle en lacunes

(*) En ordre de grandeur, on peut avoir $K_2 = 10^{13}$, $i_{\text{trempe}} = 10^{-3}$, $\frac{\rho_i}{\rho_i + \rho_l} = 1$, il faut $K_0 < 10^{10}$ paires de Frenkel par seconde.

après recuit. La vitesse initiale d'augmentation de résistivité est ainsi égale à

$$\frac{d(\Delta\rho)}{dt} = K_0 (\rho_i + \rho_\ell)$$

La vitesse d'augmentation de résistivité, après ces deux types de recuits, est la même. C'est ce que nous avons effectivement mesuré.

D'autre part, nous pouvons comparer les vitesses d'augmentation de résistivité au bout d'un même temps t pour deux irradiations d'un même échantillon avec des conditions initiales différentes.

Avant tout recuit, nous avons :

$$\frac{d(\Delta\rho)}{dt} = (\rho_i + \rho_\ell) (K_0 - K_1 \ell i) - K_2 \dot{\rho}_i i$$

et après recuit partiel des défauts d'irradiations, nous devons remplacer ℓ par $\ell' = \ell + \ell_r$ (la concentration ℓ_r définie plus haut devient alors une concentration initiale en lacunes). Puisque $\ell' > \ell$, $\frac{d(\Delta\rho)}{dt}$ est plus petit après recuit qu'auparavant. C'est ce que nous observons effectivement.

Ainsi une même hypothèse, à savoir la migration des interstitiels vers les puits ou vers les lacunes, explique les variations de pente de la courbe résistivité-flux intégré après recuit des défauts de trempe et celui des défauts d'irradiation. Nous pouvons expliquer de même l'influence d'une irradiation préalable aux neutrons.

A l'instant initial, pour un échantillon déjà irradié, à température ordinaire, aux neutrons, nous avons $i = i_{\text{trempe}}$ et $\ell = \ell_{\text{neutron}}$.

La vitesse initiale d'augmentation de résistivité est alors

$$\frac{d(\Delta\rho)}{dt} = (\rho_i + \rho_\ell) (K_0 - K_1 \ell_{\text{neutron}} i_{\text{trempe}}) - \rho_i K_2 i_{\text{trempe}} \quad (\text{IX})$$

Par comparaison des relations (VI), (VIII) et (IX) nous obtenons la double inégalité :

$$\left(\frac{d(\Delta\rho)}{dt} \right)_{\text{neutron}} < \left(\frac{d(\Delta\rho)}{dt} \right)_{\text{trempe}} < \left(\frac{d(\Delta\rho)}{dt} \right)_{\text{sans défauts}}$$

Cette relation, vérifiée expérimentalement, est valable pour un même type d'uranium (ici, brut de laminage). Le fait que la pente $\frac{d(\Delta\rho)}{dt}$ soit plus faible pour l'uranium α que pour l'uranium brut de laminage équivalent (trempé à 4,2°K) peut s'expliquer par une différence de texture.

Nous pouvons signaler en outre que la migration des défauts durant l'irradiation donne une variation de résistivité non linéaire en fonction de la dose [17].

5.2 - Comparaison des recuits des défauts d'irradiation et de ceux des défauts de trempe

5.2.1 - Comparaison des cinétiques et des stades de recuits

La cinétique de recuit des défauts d'irradiation est difficile à déterminer pour différentes raisons. La première est la précision et le nombre de mesures de résistivité en fonction de la durée en recuit : la détermination de la pente des courbes obtenues n'est

pas très précise. La seconde raison est l'ignorance, dans laquelle nous sommes, quant à la valeur finale de la résistance de l'échantillon après un recuit à une température donnée. Il aurait fallu des recuits de durée beaucoup plus longue, ce qui n'était pas possible dans nos conditions expérimentales. La troisième raison est la diversité des courbes de recuits isothermes : certaines sont uniformément décroissantes, d'autres uniformément croissantes et d'autres encore croissantes puis décroissantes.

Ces trois difficultés de détermination de cinétique sont aussi valables pour les recuits de défauts de trempe. Nous admettrons que la résistivité finale pour un recuit isotherme de 9 minutes est celle qu'on aurait pour un recuit de durée infinie à la fin du sous-stade correspondant. Nous trouvons alors pour les courbes uniformément décroissantes, une cinétique dont l'ordre est compris entre 1 et 10, dans le cas des défauts d'irradiation, JOUSSET [4] trouve une cinétique d'ordre 10 pour les défauts de trempe.

D'autre part, les courbes de recuits isochrones des défauts d'irradiation et celles des défauts de trempe [4] font apparaître des stades (des sous-stades) que nous avons groupés dans le tableau VII. Le sous-stade I_D (23 ; 26°K), trouvé dans le cas de l'uranium fortement écroui et trempé à 4,2°K, ne se trouve que pour le cas de l'uranium pour lequel la variation de résistivité induite par irradiation est de 19 % (figures 25 et 26). Dans ce cas, le sous-stade I_D serait contenu dans le domaine (24 ; 100°K). Enfin, les domaines de température des sous-stades I_A , I_B et I_C sont décalés vers les températures légèrement plus basses pour les défauts d'irradiation, par rapport aux défauts de trempe. Ces décalages sont sans doute dus aux différences de conditions expérimentales.

TABLEAU VII

Domaines de température des stades de recuit des
défauts de trempe et d'irradiation

Sous-stade	I_A	I_B	I_C	I_D
Défauts de trempe	4,2 ; 12°K	12 ; 18°K	18 ; 23°K	23 ; 26°K
Défauts d'irradiation	4,2 ; 10°K	10 ; 14°K	14 ; 24°K	24 ; 100°K

5.2.2 - Comparaison des énergies de migration

Si les domaines de température des sous-stades ne correspondent pas exactement, les énergies de migration qui leur sont associées sont, à la précision des mesures près, les mêmes pour les défauts de trempe [4] et ceux d'irradiation.

Le tableau VIII résume cette comparaison. Dans le cas des défauts de trempe, au stade I_D est associée l'énergie $E_D = 0,08 \pm 0,02$ eV.

TABLEAU VIII

Energie de migration des défauts de trempe
et d'irradiation

Sous-stade	I_A	I_B	I_C
Défauts de trempe	$0,01 \pm 0,003 \text{ eV}$	$0,025 \pm 0,008 \text{ eV}$	$0,04 \pm 0,01 \text{ eV}$
Défauts d'irradiation	$0,006 \pm 0,003 \text{ eV}$	$0,019 \pm 0,012 \text{ eV}$	$0,04 \pm 0,01 \text{ eV}$

5.3 - Comparaison des irradiations aux particules α et de celles aux électrons et aux neutrons

5.3.1 - Variation de résistivité sous irradiation

5.3.1.1 - Méthode de comparaison

La pente de la courbe de variation absolue de résistivité, $\Delta\rho$, en fonction du flux Φ permet de calculer le nombre de paires de Frenkel produites par chaque particule d'irradiation. Un exemple, appliqué aux particules α , est donné au § 3.6.

Pour comparer l'effet des différentes particules d'irradiation, nous utiliserons les courbes de variation relative de résistivité, $\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\Delta R}{R}$, en fonction des flux Φ_α , Φ_e et Φ_n en particules α , en électrons et en neutrons, respectivement. Il est alors nécessaire d'étudier des échantillons du même type et de même résistivité initiale. Nous nous bornerons à l'uranium α pour lequel les données sont les seules complètes.

D'une façon générale, la résistivité induite par une concentration volumique c en cascades (d'irradiation) contenant chacune p paires de Frenkel est

$$\Delta\rho = c p \rho_1$$

où ρ_1 est la résistivité induite par une concentration égale à une paire de Frenkel par cm^3 .

Pour un échantillon d'épaisseur ℓ , la concentration de cascades est

$$c = \frac{\Phi}{\ell}$$

D'autre part :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = p \cdot \frac{\rho_1}{\rho} \cdot \frac{\Phi}{\ell}$$

$$\text{Ainsi le paramètre } m = \ell \cdot \frac{d\left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)}{d\Phi} = \frac{\rho_1}{\rho} \cdot p$$

est proportionnel au nombre de paires de Frenkel contenues dans une cascade d'irradiation. Le rapport $\frac{\rho_1}{\rho}$ est constant pour un même type d'échantillon.

Pour les irradiations aux neutrons, d'après les valeurs des sections efficaces de fission de l'uranium, un flux $\Phi_n = 1 \text{ n.cm}^{-2}$ produit une concentration $c = 0,35 \text{ ffc.m}^{-3}$ où ff est un fragment de fission. Ainsi la variation de résistivité

$$\Delta\rho = 0,35 \text{ p. } \rho_1 \Phi$$

$$\text{le paramètre } m_n = \frac{1}{0,35} \frac{d(\frac{\Delta\rho}{\rho})}{d\Phi} = \frac{\rho_1}{\rho} \cdot p$$

a une expression identique au paramètre m défini plus haut. Nous comparerons donc m_n , m_e et m_α ; paramètres relatifs aux neutrons, aux électrons et aux particules, respectivement (*).

5.3.1.2 - Comparaison avec les irradiations aux neutrons

Les irradiations de l'uranium aux neutrons ont été faites par BURGER et al. [26] [27], à la température de 4,5°K.

Pour l'uranium recuit en phase α , les différentes valeurs des paramètres étudiés ont été portées dans le tableau IX. Nous avons posé que pour les particules α , $l = l_\alpha = 2.10^{-3} \text{ cm}$. Il apparaît, d'après la valeur du rapport $\frac{m_n}{m_\alpha} = \frac{p_n}{p_\alpha} = 47$, qu'un fragment de fission cause environ 50 fois plus de défauts ponctuels qu'une particule α .

Les calculs théoriques du nombre de défauts créés par irradiation ont été rassemblés par LIDIARD [59]. Les résultats montrent que les calculs simples donnent des valeurs assez précises, au moins à un facteur 3 près.

Ainsi le nombre de défauts créés par une particule d'énergie E et de masse m , dans un métal (atome de masse M), est

$$n \approx 0,5 \frac{E_1}{E_d}$$

où $E_d \approx 30 \text{ eV}$ est l'énergie de seuil de déplacement et $E_1 = \frac{4mM}{(m+M)^2} E$ est l'énergie maximale transmise par une particule à un atome. Pour les particules α et les fragments de fission, on trouve $n_\alpha = 1.10^3$ et $n_n = 1,5.10^5$ donc $\frac{n_n}{n_\alpha} \approx 150$.

Le rapport théorique $\frac{n_n}{n_\alpha}$ est donc bien de l'ordre du rapport mesuré $\frac{p_n}{p_\alpha}$ aux approximations de calcul près.

Les valeurs de n_α et n_n sont en accord avec ceux d'ELLIOTT [40] (particules α dans les alliages Ce-Pu) et ceux de QUERE [54] (irradiations de l'uranium aux neutrons).

D'autre part, rappelons qu'après une diminution initiale, la résistivité de l'uranium (trempé à 4,2°K) augmente de façon linéaire à partir d'une dose de $4.10^{11} \alpha.\text{cm}^{-2}$. Ce résultat est conforme aux calculs de LETEURTRE [16] sur les fragments de fission.

(*) Nous supposons que les défauts ponctuels créés par irradiation se condensent en des boucles de dislocation de petite taille. La résistivité induite par de telles boucles est alors négligeable devant celle induite par les défauts agglomérés. Des observations au microscope électronique [16] justifient cette hypothèse.

TABLEAU IX

Comparaison des irradiations de l'uranium α
aux électrons, aux neutrons et aux particules α

Irradiation aux	neutrons (fragments de fission)	particules α	électrons
$d \left(\frac{\Delta \rho}{\rho} \right) / d \Phi$	$2,5 \cdot 10^{16} (\text{n. cm}^{-2})^{-1}$	$7,5 \cdot 10^{-15} (\alpha. \text{cm}^{-2})^{-1}$	$3 \cdot 10^{-19} (\text{e. cm}^{-2})^{-1}$
m	$7 \cdot 10^{-16}$	$1,5 \cdot 10^{-17}$	$6 \cdot 10^{-21}$
$\frac{m}{m_e} = \frac{p}{p_e}$	$1,16 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^3$	1
$\frac{m}{m_\alpha} = \frac{p}{p}$	47	1	$4 \cdot 10^{-4}$
p = nombre de paires F dans chaque cascade d'irradiation Pour les autres paramètres : voir texte.			

On trouve que le volume d'influence d'un fragment de fission est environ 20 fois plus grand que celui d'une particule α (*).

Remarquons, enfin, que la pente de $\frac{\Delta R}{R}$ en fonction de la dose, est plus forte, en général, pour l'uranium écroui que pour celui recuit en phase α . Ce résultat est en accord avec ceux de SWANSON et PIERCY [63] concernant l'aluminium et l'or irradiés aux neutrons rapides.

5.3.1.3 - Comparaison avec les irradiations aux électrons

Les expériences d'irradiation de l'uranium aux électrons ont été faites par JOUSSET et al. [22] [23]. Nous comparerons leurs résultats à ceux que nous avons obtenus par irradiation α , bien que leurs températures d'irradiation (7°K et 8°K) soient supérieures à la nôtre (4,2°K). Ces températures sont situées, rappelons-le, dans le même sous-stade I_2 de recuit.

La comparaison, pour l'uranium traité en phase α , se fait d'après les valeurs définies au § 5.3.1.1 et portées dans le tableau VII. Nous avons pris $\ell = \ell_e = 2 \cdot 10^{-2}$ cm

(*)

L'imprécision sur la valeur du flux empêche tout calcul rigoureux.

Le nombre calculé de défauts d'irradiation est $n_{\alpha} = 1.10^3$ et $n_n = 1,5.10^5$, défauts élémentaires produits par une particule α et par un fragment de fission. Il apparaît que les rapports des nombres de paires de Frenkel

$$\frac{p_{\alpha}}{p_e} = 2,5.10^3 \text{ et } \frac{p_n}{p_e} = 1.16.10^5$$

sont en accord avec les valeurs théoriques correspondantes.

5.3.2 - Courbes de recuit

5.3.2.1 - Comparaison avec les irradiations aux électrons

Les irradiations d'uranium par des électrons [22] [23] ont donné, à 8°K, un accroissement de résistivité $\frac{\Delta \rho_i}{\rho} = 0,10 \pm 0,01$ et, à 7°K, $\frac{\Delta \rho_i}{\rho} = 0,07$.

Les recuits isochrones de cette résistivité résiduelle présentent un minimum de $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_i}$, vers 20°K, température au-dessus de laquelle apparaît l'effet de trempe. Le minimum de $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_i}$ est environ de 0,65, alors que la saturation de résistivité induite par trempe est $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_i} = 0,75 \pm 0,02$ pour le premier échantillon et $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_i} = 1,3 \pm 0,2$ pour le second.

Le recuit de l'échantillon d'uranium irradié par des particules α donne, comme pour les électrons, une diminution de résistivité jusqu'à 19°K. L'arrêt de l'expérience à cette température ne nous a pas permis d'obtenir l'effet de trempe pour cet échantillon alors que nous l'avons observé dans d'autres recuits (échantillons préalablement irradiés aux neutrons, figure 30).

Les recuits d'échantillons irradiés montrent que plus forte est l'augmentation de résistivité induite par irradiation, plus faible est celle induite par trempe après recuit. Nos expériences sur le recuit d'échantillon écroui (figure 26) montrent que si l'augmentation de résistivité après irradiation est assez forte, $\Delta \rho_i = 0,8 \mu\Omega \text{ cm}$, l'effet de trempe est masqué alors qu'il devrait donner une augmentation observable. Cela signifie que l'augmentation de résistivité due à la trempe n'est pas due à la présence d'une phase trempée ; elle est bien due à des défauts ponctuels. Après plusieurs recuits à des températures T inférieures à 20°K, les interstitiels créés par trempe, lors des recuits à $T > 20^\circ\text{K}$, sont annihilés vers 4,2°K par les lacunes subsistantes, lorsque celles-ci sont en concentration suffisante.

5.3.2.2 - Comparaison avec les irradiations aux neutrons

Les irradiations aux neutrons [4] [26] [27] montrent que pour l'uranium α l'augmentation de résistivité est $\Delta \rho_i = 0,9 \mu\Omega \text{ cm}$ pour un flux intégré de $4.10^{14} \text{ n.cm}^{-2}$. Le recuit de cet échantillon s'est fait d'une façon un peu particulière : la résistivité ρ est mesurée à la température de recuit et son accroissement $\Delta \rho$ se calcule par différence entre la résistivité après irradiation et celle avant. Dans ces conditions, on observe que la résistivité induite par irradiation s'annule vers 100°K. Par ailleurs, l'absence de l'effet de trempe lors des recuits serait due soit à une différence de nature entre les défauts créés par les fragments de fission et ceux créés par les électrons, soit à une différence de concentration en défauts pour ces deux types d'irradiation.

Dans les différents recuits d'échantillons d'uranium irradiés aux particules α , seul

l'échantillon dont l'augmentation de résistivité atteint $\Delta \rho_i = 0,6 \mu\Omega \text{ cm}$ a un comportement analogue à celui de l'échantillon irradié aux neutrons. Les autres recuits sont analogues à ceux d'échantillons irradiés aux électrons ou trempés à 4,2°K.

L'absence d'un effet de trempe pour les recuits à des températures supérieures à 20°K s'explique donc par une différence de concentration : elle a lieu lorsque la concentration en lacunes à recuire est assez forte. Elle ne s'explique pas par l'hypothèse d'une phase trempée.

D'autre part, les quantités de défauts recuits dans les sous-stades I_A , I_B et I_C sont très petites dans le cas de l'échantillon irradié aux neutrons. Il en est de même pour l'échantillon écroui, fortement irradié aux particules α (figure 26). Cela peut signifier que lorsque la concentration en défauts d'irradiation augmente, les défauts ponctuels se réarrangent en des configurations de plus en plus stables : s'agglomérant en amas, ou se condensant en boucles de dislocation. Les défauts ponctuels agglomérés se recuisent alors à des températures plus élevées que les défauts isolés.

5.4 - Nature des défauts créés par les particules α

5.4.1 - Possibilités d'expériences complémentaires

Notre étude ne portait que sur des mesures de résistivité. Pour connaître la nature des défauts créés dans l'uranium par les particules α , il est nécessaire d'utiliser d'autres méthodes. Par exemple, il serait souhaitable d'observer au microscope électronique les échantillons irradiés ; mais nous avons vu que toute élévation de température au-dessus de 4,2°K recuit certains défauts d'irradiation.

Les manipulations entièrement dans l'hélium liquide ne sont actuellement pas possibles ; un réchauffement est inéluctable. Ces observations ne semblent donc pas possibles.

Des mesures de longueur d'échantillons irradiés associées à des mesures de paramètres cristallins par rayons X semblent plus fructueuses car elles décèleraient les concentrations en défauts ponctuels, en même temps qu'une croissance éventuelle sous irradiation.

Un autre complément à notre étude serait une série d'irradiations aux particules α , mais à des flux intégrés beaucoup plus élevés, en utilisant les réactions nucléaires du type (n, α) produites dans un réacteur. Une valeur élevée du flux instantané devrait diminuer la dispersion des mesures sous irradiation, parce que la création de défauts serait alors beaucoup plus importante que leur annihilation par légère augmentation de température. Cependant, les effets de la fission ne pourront pas être évités pour l'uranium naturel.

Enfin, il serait souhaitable d'irradier de l'uranium aux particules α aux faibles flux mais à des températures inférieures à 4,2°K où les défauts d'irradiation seraient immobiles.

Avec tout ou partie de cet ensemble d'expériences complémentaires possibles, il serait plus facile de déterminer la nature et la configuration des défauts créés par les particules α .

5.4.2 - Configuration des défauts créés par les particules α

D'après les résultats de nos expériences de recuit, nous pouvons au moins donner un modèle simple de la configuration des défauts ponctuels créés par irradiation aux particules α et stables à 4,2°K.

Toute particule α incidente produit une cascade de déplacements créant des interstitiels et des lacunes. Les lacunes sont situées près de la trajectoire de la particule tandis que les interstitiels sont créés d'une façon un peu aléatoire dans le volume de l'échantillon d'uranium. Par migration, ces interstitiels se condensent en des ensembles (amas ou boucles de dislocation) de quelques atomes. Les sous-stades de recuit I_A , I_B , I_C correspondent à "l'évaporation" de ces ensembles, ce qui expliquerait l'existence des différentes énergies de migration et des différents sous-stades. Ces condensations peuvent être influencées et modifiées par les différents atomes d'impuretés.

Pour les recuits à des températures supérieures à 20°K, l'habituelle plongée dans l'hélium liquide (trempe) crée des interstitiels. Ceux-ci viennent s'ajouter aux interstitiels non encore recuits, à moins que les lacunes subsistantes soient en concentration assez forte pour les annihiler.

Ces ensembles d'interstitiels condensés existeraient tant après trempe qu'après irradiation aux neutrons, électrons ou particules α ; seules varient leur taille et leur nombre pour ces quatre modes de formation. De tels amas en boucles sont visibles en microscopie électronique pour les échantillons d'uranium irradiés aux neutrons, à la température ordinaire et à des doses dépassant 1.10^{16} n.cm⁻² [16]. Dans ce cas, une boucle ou un amas contient quelques dizaines de lacunes ou d'interstitiels ; mais lorsque la dose de neutrons augmente la taille des amas croît et pas leur nombre. Ces observations ne sont pas nécessairement valables pour les irradiations dans l'hélium liquide, mais elles n'infirmement pas notre hypothèse.

CHAPITRE VI

- CONCLUSION -

De notre étude nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

1. Il est possible d'irradier des métaux, à très basse température, sans utiliser des installations lourdes telles que les réacteurs nucléaires ou les accélérateurs.
2. Les défauts ponctuels créés par irradiation dans l'uranium sont très vraisemblablement mobiles dès 4,2°K. Ce résultat n'a encore été obtenu pour aucun autre métal jusqu'à présent.
3. L'augmentation de résistivité de l'uranium trempé à 4,2°K à partir d'une température supérieure à 22°K s'explique bien par la création de défauts ponctuels. En effet, une irradiation aux particules α donne les mêmes résultats qu'une trempe en ce qui concerne les stades de recuit des défauts et leur énergie de migration. De plus, l'effet de trempe est absent dans les recuits d'échantillons fortement irradiés. Cela ne s'explique pas par la présence d'une phase trempée.
4. Une particule α (4 MeV) crée dans l'uranium environ 2000 fois plus de défauts qu'un électron (1,7 MeV). Mais à concentration produite égale, les défauts d'irradiation de ces particules ont le même comportement quant à leur recuit.
5. Une particule α crée environ 50 fois moins de défauts que les fragments de fission créés par des neutrons thermiques frappant les noyaux d'uranium. Mais à concentration produite équivalente, les défauts d'irradiation ont le même comportement quant à leur recuit.

Manuscrit reçu le 28 octobre 1968

VII - APPENDICE

Annexe I - Irradiation parasite créée par radioactivation des impuretés
contenues dans l'uranium

Les particules α peuvent rendre radioactifs les noyaux des impuretés contenues dans l'uranium. Ces réactions d'activation peuvent être du type (α, p) ou (α, n) . Les réactions du type (α, p) nécessitent des particules de 5 à 20 MeV : elles ne peuvent pas avoir lieu dans nos expériences pour lesquelles l'énergie des particules est de 4 MeV.

Par contre, il existe une soixantaine de réactions (α, n) du type $^{27}_{13}\text{Al}(\alpha, n)^{30}_{15}\text{P}^*$ nécessitant des énergies des énergies de 0,5 à 20 MeV pour les particules α . Les neutrons peuvent produire la fission des noyaux d'uranium et les fragments de fission peuvent créer des défauts ponctuels dans le réseau cristallin.

Pour une concentration atomique de $2 \cdot 10^{-3}$ en impuretés on a 10^{20} atomes par cm^3 . Par activation (α, n) il se crée dans 1 cm^3 N_n neutrons par seconde, $N_n = 1 \cdot 10^{20} \Phi_\alpha \sigma$

$\Phi_\alpha = 1 \cdot 10^6 \alpha \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ est le flux en particules α .

$\sigma = 10^{-23} \text{ cm}^2$ est la section efficace maximale de capture α .

On a donc :

$$N_A = 1 \cdot 10^3$$

Ces N_n neutrons créent N_{ff} fragments de fission, la section efficace de fission étant telle que $N_{ff} < 2 N_n = 2 \cdot 10^3 \text{ (ff} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1})$. Un fragment de fission crée environ $1 \cdot 10^5$ paires de Frenkel.

Pour un flux $\Phi_\alpha = 1 \cdot 10^6 (\alpha \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$ et un libre parcours $l_\alpha = 5 \cdot 10^{-4} \text{ (cm)}$, il se crée n'_α paires par cm^3 par seconde.

$$n'_\alpha = \frac{1 \cdot 10^6}{5 \cdot 10^{-4}} 1 \cdot 10^3 = 2 \cdot 10^{12}$$

D'autre part $n'_n = 1 \cdot 10^5 \cdot 2 \cdot 10^3 = 2 \cdot 10^8$

Ainsi, il vient $\frac{n'_n}{n'_\alpha} < 1 \cdot 10^{-4}$. Les défauts ponctuels créés par l'irradiation parasite sont absolument négligeables devant ceux créés par l'irradiation α primaire. Cela est d'autant plus vrai que dans toutes nos hypothèses nous avons surestimé tous les paramètres concernant cette irradiation parasite.

VIII - REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] T.G. BERLINCOURT
Physical Review 1959, 114, 969 .
- [2] G.T. MEADEN
Ph. D. Thesis, 1961, Univ. Oxford.
- [3] S. ARAJS - R.V. COLVIN
Journ. Less Common - Met. 1966, 7, 54
- [4] J.C. JOUSSET
Thèse 1967, Univ. Orsay.
- [5] J.C. JOUSSET
Phys. Stat. Sol., 1968, 29
- [6] W.W. TYLER - A.C. WILSON - C.J. VOLGA
Trans. AIME 1953, 197, 1238
- [7] H.E. FLOTOW - H.R. LOHR
Journ. Phys. Chem. 1960, 64, 904

H.E. FLOTOW - D.W. OSBORNE
Physical Review 1966, 151, 564
- [8] C.S. BARRETT - M.H. MUELLER - HITTERMAN
Physical Review 1963, 129, 625
- [9] E.S. FISHER - Mc SKIMIN
Physical Review 1961, 124, 67
- [10] E.S. FISHER - D. DEVER
Physical Review 1968 (à paraître)

- [11] J. FRIEDEL
Symposium on internal strains and fatigue in metals, General Motor Research
Lab. Detroit, 1958 p. 5
- [12] A.C. ROBERTS - A.H. COTTRELL
Phil. Mag. 1956, 1, 711
- [13] J. FRIEDEL
Dislocations - Pergamon Press New-York, 1964
- [14] J.D. FILEY - L. MARTIN
Phys. Lett. 1963, 3, 244
- [15] C.S. BARRETT
Acta Cryst. 1956, 9, 671
- [16] J. LETEURTRE
Communication privée
Thèse Univ. Orsay (à paraître 1968)
- [16a] S. GOLLER - G. VOGL - J.C. JOUSSET
Phys. Letters, 1968, 27 A, 408
- [17] H.H. NEELY - A. SOSIN
Phys. Rev. 1966, 152, 623
- [18] J.C. JOUSSET - Y. QUERE
Physics Lett. 1963, 5 (4), 238
- [19] J.C. JOUSSET
Acta Met. 1966, 14, 193
- [20] T.H. GEBALLE - B.T. MATTHIAS - K. ANDRES - E.S. FISHER - T.F. SMITH
W.H. ZACHARIASEN
Science, 1966, 152, 755
- [21] W.E. GARNIER - T.F. SMITH
Phys. Review 1967, 154, 2
- [22] J.C. JOUSSET - A. LUCASSON - P. LUCASSON
Phil. Mag. 1966, 13, 887
- [23] J.C. JOUSSET - A. LUCASSON - P. LUCASSON
Xe Colloque Métallurgie Saclay 1966, 75

- [24] D.A. WIGLEY
Ph. D. Thesis 1964, Univ. Oxford
- [25] G. BURGER - H. WENZL - K. ISEBECK - J.C. JOUSSET - Y. QUERE
Phys. Lett. 1965, 16, 3
- [26] G. BURGER - H. WENZL - K. ISEBECK - J.C. JOUSSET - Y. QUERE
Phil. Mag. 1965, 11 (111) 621
- [27] G. BURGER - K. ISEBECK - H. WENZL - J.C. JOUSSET - Y. QUERE
Xe Colloque Métallurgie Saclay 1966, 71
- [28] F. DWORSCHAK - H. SCHUSTER - H. WOLLENBERGER
Phys. Stat. Solidi 1967, 21, 741
- [29] W.G. PFANN
Journ. of Metals 1952, 4, 747
Zone Melting John Wiley and Sons New-York 1958
- [30] G. CLOTTES - J.P. MUSTELIER
Vie Colloque Métallurgie Saclay 1962, 69
- [31] G. CLOTTES
Thèse 1965, Univ. Paris
- [32] G.L. CANO - R.W. DRESSEL
Physical Review 1965, 139 (6A), A1183
- [33] S. BARKAN
Physique Nucléaire, Istambul 1963, 28C, 71
- [34] P.B. PRICE - R.M. WALKER
Journ. Appl. Phys. 1962, 33, 3400
- [35] R.L. FLEISCHER - P.B. PRICE - R.M. WALKER - E.L. HUBBARD
Physical Review 1964, 133A, 1443
- [36] J.A. BRINKMAN
Amer. Journ. Phys. 1956, 24, 246
Nucl. Metal. Fall Meetg Metall. Soc. Chicago 1959, 6
- [37] J. MORY
Sur quelques utilisations de l'enregistrement des fragments de fission dans les isolants. Rapport C.E.A., 1965, CEA-R-2848

- [38] R.B. SCOTT
Cryogenic Engineering, Norstrand Co., Princeton 1959, 115
- [39] P. PASCAL
Nouveau Traité de Chimie Minérale, 1963, 1, 1024
- [40] R.O. ELLIOTT - W.N. MINER - F.W. CLINARD
Journ. Less Common Met. 1967, 13, (3), 274-280
- [41] A. MATTHIESSEN
Rep. Brit. Ass. 1862, 32, 144
Ann. Phys. und Chem. Lpz - 1864, 7, 761, 892
- [42] A. SOMMERFELD - H. BETHE
Handbuch der Phys. Berlin, 1933, 24, 2
- [43] R. REICH
Thèse 1965 Univ. Paris
Mem. Sc. Rev. Met. 1965, 52, 801 ; 1966, 53, 21
- [44] W. HEISENBERG - W. BOTHE - K.F. BONHOEFFER - K. CLUSIUS -
A. BUTENANDT - A. KUHN - O. RENNER
Zeit fur Natürforsch. 1957, 12a, 710
- [45] P.G. LUCASSON - R.M. WALKER
Phys. Rev. 1962, 127, 1130
- [46] A. CORCIOVEI - A. BABCENCO
Phys. Stat. Sol. 1964, 4, 587
- [47] C. BUDIN - P. LUCASSON
Physics Lett. 1965, 16(3), 229
- [48] A. CORCIOVEI - A. BABCENCO
Studii si Certari de fiz. 1964, 15(1), 5
- [49] L.C.R. ALFRED
Phys. Rev. 1966, 152(2), 693
- [50] V. TEODOSIC
Applied Phys. Lett. 1966, 9(5) 209
- [51] B. NAVINSEK - G. CARTER
Applied Physics Lett. 1967, 10(3), 91

- [52] J. FRIEDEL
The Interaction of Radiation with Solids -
Cours d'été 1963, Mol 1964, 114
- [53] W. BAUER
Low temperature annealing spectrum of electron irradiated gold and cadmium.
Thèse 1962, Univ. of Illinois, Urbana
- [54] D.L. DOUGLASS - S.E. BRONISZ
Trans. Metall. Soc. AIME 1963, 227 (5), 1151
- [55] Y. QUERE
Journ. Nucl. Matern. 1963, 9(3), 290
- [56] A.D. BRAILSFORD
Journ. Nucl. Mat. 1963, 8, 3
- [57] W. PRIMAK
Journ. Appl. Phys. 1960, 31, 1524
- [58] A.C. DAMASK - G.J. DIENES
Point Defect in Metals, Gordon Breach London, 1964, 77
- [59] A.B. LIDIARD
Crystal defects and radiation damage, Harwell, Eng.
1964 - AERE, PGEC/L "O, 12
- [60] Y. QUERE - J. DOULAT
Comptes Rendus Ac. Sci. 1961, 252(9), 1305
- [61] B. HUDSON
Journ. Nucl. Matern. 1967, 22, 121
- [62] W.E. GARNER - T.F. SMITH
Physical Review 1967, 154, 2
- [63] M.L. SWANSON - G.R. PIERCY
Canad. Journ. Phys. 1964, 42, 1605
- [64] J. DURAL - C. WEINBERG - R. CONTE
Phys. Letters 1968 (à paraître)

LISTE DES FIGURES

	Pages
Fig. 1 Maille cristalline de l'uranium	12
Fig. 2 Variation de la constante élastique C_{11} en fonction de la température pour l'uranium [10]	13
Fig. 3 Configurations possibles d'interstitiels dans l'uranium [4]	14
Fig. 4 Schémas des échantillons et d'un porte-échantillon	18
Fig. 5 Schéma d'une canne	20
Fig. 6 Auto-radiographie alpha de source d'américium	23
Fig. 7 Spectre d'énergie des particules alpha	24
Fig. 8 Calcul de l'absorption des particules dans un ralentisseur	25
Fig. 9 Absorption des particules alpha de l'américium dans l'aluminium	27
Fig. 10 Schéma du bouchon du cryostat	28
Fig. 11 Schéma du dispositif	29
Fig. 12 Fermeture du siphon	30
Fig. 13 Vue du dispositif	32
Fig. 14 Variation de la résistance électrique de l'uranium alpha pour les faibles flux intégrés	39
Fig. 15 Variation de la résistance électrique de l'uranium alpha en fonction du flux intégré	40
Fig. 16 Irradiation de l'or et du cadmium aux électrons à 8°K [53]	40
Fig. 17 Micrographie optique de l'uranium brut de laminage	41
Fig. 18 Micrographie électronique de l'uranium brut de laminage	42
Fig. 19 Variation de la résistance électrique de l'uranium brut de laminage trempé dans l'hélium liquide	43
Fig. 20 Comparaison des variations de résistance électrique pour deux échantillons bruts de laminage ayant subi différents traitements	44

Fig. 21	Variation de résistance électrique d'échantillons d'uranium préalablement irradiés aux neutrons	46
Fig. 22	Schéma des différents types de recuits	50
Fig. 23	Recuits isochrones de l'uranium alpha	53
Fig. 24	Recuits des défauts de trempe dans l'uranium brut de laminage	54
Fig. 25	Recuit des défauts de trempe et d'irradiation dans l'uranium brut de laminage	54
Fig. 26	Recuit isochrone des défauts d'irradiation dans l'uranium brut de laminage trempé à 4,2°K	55
Fig. 27	Recuits isothermes de l'uranium écroui, sans défauts de trempe	57
Fig. 28	Recuits isochrones de l'uranium écroui, sans défauts de trempe	57
Fig. 29	Recuits combinés de l'uranium préalablement irradié aux neutrons	59
Fig. 30	Recuits isochrones de l'uranium préalablement irradié aux neutrons	59
Fig. 31	Variation de la résistance de l'uranium alpha durant un remplissage en hélium liquide	62

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

VU

LE PRESIDENT DU JURY

G. CHAMPIER

VU, APPROUVE

ET PERMIS D'IMPRIMER

NANCY, LE 17 MAI 1968

LE DOYEN DE LA FACULTE DES SCIENCES

DE NANCY

J. AUBRY

